

Diss. ETH Nr. 10714

Helium und Tritium als Tracer für physikalische Prozesse in Seen

ABHANDLUNG
zur Erlangung des Titels
DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN
der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZÜRICH

vorgelegt von
Werner Aeschbach-Hertig
dipl. Phys. ETH
geboren am 3. 2. 1964
von Zürich, Adliswil (ZH) und Leutwil (AG)

angenommen auf Antrag von
Prof. Dr. D. M. Imboden, Referent
Prof. Dr. P. Signer, Korreferent

Zürich 1994

Verdankungen

Diese Arbeit wäre undenkbar ohne die unzähligen kleineren und grösseren Beiträge einer Vielzahl von Personen. Ihnen allen gebührt mein herzlicher Dank.

Dieter Imboden hat mich kurzentschlossen in seine Umweltphysik-Gruppe aufgenommen. Es ist ihm gelungen, ein menschlich wie wissenschaftlich hervorragendes und inspirierendes Arbeitsumfeld zu schaffen. Besonders durch die enge Zusammenarbeit in der von ihm geleiteten Untergruppe Umweltisotope habe ich viel – und nicht nur fachbezogenes – von ihm gelernt.

Peter Signer hat mir die Arbeit in seinem Edelgaslabor ermöglicht. Seine kritischen Kommentare waren stets hilfreich, bei der experimentellen Arbeit ebenso wie beim Versuch, die Resultate am Ende klar und verständlich zu Papier zu bringen.

Rolf Kipfer alias RoKi wurde im Verlauf der vierjährigen Arbeit, wie Peter Signer es ganz zu Beginn treffend formuliert hatte, zu meinem wissenschaftlichen "grossen Bruder". Er hat mich eingeführt in die Geheimnisse der Edelgas-Massenspektrometrie sowie der Erdwissenschaften. Gemeinsam haben wir das für uns beide neue Gebiet der aquatischen Physik erkundet. Sein unbändiger Tatendrang hat mich herausgefordert und so zum Umfang dieser Arbeit beigetragen.

Markus Hofer hat ungezählte Proben gemessen. Er hat eine Datenbank zur Verwaltung der rasch wachsenden Datenmenge entwickelt, wobei er geduldig auf meine sich des öfters ändernden Wünsche einging. Seine gestalterischen Fähigkeiten kommen auch in den schönsten Grafiken dieser Arbeit zum Ausdruck.

Mike Schurter war als erfahrener Kapitän und intimer Kenner der technischen Ausrüstung eine unverzichtbare Hilfe bei vielen Probenahmen.

Roland Hohmann hat als Diplomand und später als Doktorand wichtige Beiträge zur Untersuchung des Zugersees geleistet.

Ohne *Heiri Baur* kann man sich das Edelgaslabor kaum vorstellen. Mit seiner riesigen Erfahrung und technischen Brillanz war er bei experimentellen Fragen stets die höchste Instanz.

Rainer Wieler danke ich besonders für die unkomplizierte finanzielle Hilfe in der Schlussphase.

Urs Menet und *Stefan Thürig* haben mit raffinierten Ideen und technischem Geschick zur stetigen Verbesserung der Apparatur beigetragen.

Allen nicht namentlich genannten *Mitarbeitern der Umweltphysik sowie des Edelgaslabors* danke ich in erster Linie für die herzliche Aufnahme und die gute Atmosphäre in ihren Gruppen. Alle haben sie in irgendeiner Weise zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Ein besonderer Dank geht an die Herren *Beck, Simona und Scharf* für die unkomplizierte Zusammenarbeit bei den Probenahmen auf dem Zuger-, Luganer- und Laacher See.

Meine *Eltern und Schwiegereltern* haben es mit moralischer, finanzieller und tatkräftiger Unterstützung erst möglich gemacht, dass ich die problematische Kombination der Rollen als Vater und Doktorand bewältigen konnte.

Meine Frau *Babs* hatte vor allem in der Endphase den Grossteil der familiären Aufgaben alleine zu tragen, was sie mit Geduld und viel Liebe tat. Ich hoffe, mich eines Tages für die Opfer, die sie erbracht hat, revanchieren zu können. Ich bin überzeugt, dass wir mit unserem gegenseitigen Vertrauen auch die zukünftigen Abenteuer des Lebens gemeinsam meistern werden.

Von meinen Kindern *Mirjam* und *Philipp* kann ich zwar nicht behaupten, sie hätten viel zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Dafür haben sie mein Leben um eine neue Dimension bereichert und mir immer wieder gezeigt, worauf es wirklich ankommt.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Fragestellungen	1
1.1. Motivation	1
1.2. Grundlagen der physikalischen Limnologie	1
1.3. Tritium und Helium als hydrologische Tracer	2
1.4. Ausgangslage dieser Arbeit	4
1.5. Fragestellungen	5
1.5.1. Physikalisch-limnologische Fragestellungen	5
1.5.2. Erdwissenschaftliche Fragestellungen	6
1.5.3. Experimentelle Ziele	7
2. Helium und Tritium in der Geosphäre	8
2.1. Spezielle Einheiten und Konstanten	8
2.1.1. Einheiten für Helium und Tritium	8
2.1.2. Konstanten mit Bezug zu Helium und Tritium	9
2.1.3. Auswirkungen fehlerbehafteter Konstanten	11
2.2. Herkunft und Verteilung von Helium und Neon auf der Erde	12
2.2.1. Besonderheiten von Helium	12
2.2.2. Helium in der Atmosphäre	14
2.2.3. Helium in der Erdkruste	14
2.2.4. Helium im Erdmantel	15
2.2.5. Heliumquellen im Überblick und in Schweizer Seen	16
2.2.6. Neon in den terrestrischen Reservoirs	17
2.3. Helium-, Wärme- und Kohlenstofffluss aus dem Erdinnern	18
2.3.1. Flüsse über ozeanischer Kruste	18
2.3.2. Flüsse über kontinentaler Kruste	19
2.3.3. Zusammenfassung	20
2.4. Herkunft und Verteilung von Tritium auf der Erde	21
2.4.1. Natürliches Tritium	21
2.4.2. Anthropogenes Tritium	23
2.4.3. Rekonstruktion der Tritiumkonzentrationen im Niederschlag	23
2.5. Helium und Neon im Wasser	27
2.5.1. Löslichkeit von Gasen in Wasser	27
2.5.2. Literaturdaten zu den Löslichkeiten von Helium und Neon	28
2.5.3. Isotopenfraktionierung bei der Lösung	31
2.6. Austausch von Helium und Tritium zwischen Wasser und Luft	32
2.6.1. Modelle des Gasaustausches	32

2.6.2. Abhängigkeit des Gasaustausches vom molekularen Diffusionskoeffizienten	34
2.6.3. Abhängigkeit des Gasaustausches von der Windgeschwindigkeit ...	36
2.6.4. Austausch von Tritium zwischen Wasser und Dampf	37
3. Experimentelle Aspekte der ^3H-^3He-Methode	40
3.1. Messprinzip und Apparatur	40
3.1.1. Probenahme und Probenbehälter	41
3.1.2. Extraktion	42
3.1.3. Gasreinigung	48
3.1.4. Messung im Massenspektrometer	48
3.1.5. Probengewicht	50
3.1.6. Zuverlässigkeit der gesamten analytischen Methode	52
3.2. Helium-Neon-Messung: Genauigkeit und Reproduzierbarkeit	54
3.2.1. Fehler der Einzelmessung	54
3.2.2. Kalibration und Stabilität	55
3.2.3. Beispiel zur Stabilität der Eichung	57
3.2.4. Absolutgenauigkeit des Luftstandards	60
3.2.5. Untergrund und Blindwert	60
3.2.6. Reproduzierbarkeit: Wasserstandards	62
3.3. Tritium-Bestimmung: Genauigkeit und Nachweisgrenze	64
3.3.1. Fehler der Einzelmessung	64
3.3.2. Kalibration und Stabilität	65
3.3.3. Absolutgenauigkeit des Standards	66
3.3.4. Untergrund, Blindwert und Nachweisgrenze	67
3.3.5. Reproduzierbarkeit: Wasserstandards	71
4. Von den Rohdaten zum Wasseralter	73
4.1. Isotopenverhältnisse und Konzentrationen	73
4.1.1. Tritiumkonzentration	73
4.1.2. $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Isotopenverhältnis	74
4.1.3. He- und Ne-Konzentrationen	74
4.2. Abweichungen vom atmosphärischen Gleichgewicht	75
4.2.1. Definition der Sättigungsanomalien	75
4.2.2. Daten zur Berechnung der Sättigung	75
4.2.3. Vergleich der theoretischen Sättigungsdaten mit Felddaten	77
4.3. Tritogenes ^3He	82
4.3.1. Die Helium- und Neonkomponenten in Seen	82
4.3.2. Identifikation der Komponenten mittels geeigneter Grafiken	84

4.3.3. Berechnung des tritiogenen ^3He	94
4.4. Wasseralter	98
4.4.1. Genauigkeit und Auflösung der Altersbestimmung	98
5. Interpretation von Wasseraltern	100
5.1. Gasaustausch und initiales Wasseralter	101
5.2. Einfluss der Mischung auf das Wasseralter	103
5.3. Das "1-Box-Modell des Hypolimnions"	104
5.3.1. Das 1-Box-Modell mit konstantem Tritiumeintrag	106
5.3.2. Das 1-Box-Modell mit realistischem Zeitverlauf des Tritiumeintrags	108
5.4. Die Transportgleichung für das ^3H - ^3He -Alter	112
5.4.1. Die Transportgleichung des Alters in einer Dimension	112
5.4.2. Die Transportgleichung des Alters in mehreren Dimensionen	115
5.5. Modellkonzepte für Helium und Tritium in Seen	117
5.5.1. Das 1-Box-Modell	117
5.5.2. Das 2-Box-Modell	119
5.5.3. Das eindimensionale topographische vertikale Modell	120
5.5.4. Das CHEMSEE-Modell	122
5.6. Bestimmung von Prozessparametern	122
5.6.1. Vertikale Mischung	123
5.6.2. Gasaustausch	125
5.6.3. Heliumfluss aus dem Untergrund	127
5.6.4. Sauerstoffzehrung	129
5.7. Zusammenfassung	131
6. Vertikale Mischung in stagnierenden Seen	132
6.1. Zugersee: Experimentelle Daten	132
6.1.1. Beschreibung des Zugersees	132
6.1.2. Temperatur, Leitfähigkeit und Sauerstoff	134
6.1.3. Tritium, Helium und Wasseralter	137
6.2. Vertikaler Diffusionskoeffizient im Zugersee	139
6.2.1. Berechnung von K_z aus den ^3H - ^3He -Daten	139
6.2.2. Vergleich mit K_z aus Temperaturdaten und Interpretation	141
6.2.3. Sensitivität des CHEMSEE-Modelles für K_z	142
6.2.4. Austauschraten in 2-Box-Modellen	144
6.3. Weitere Prozessparameter im Zugersee	145
6.3.1. Gasaustauschgeschwindigkeit	145
6.3.2. Heliumfluss aus dem Untergrund	148
6.3.3. Sauerstoffzehrung	151

6.4. Die langfristige Entwicklung des Zugersees	153
6.4.1. Reproduktion der heutigen Profile	153
6.4.2. Die zeitliche Entwicklung der Modellvariablen	154
6.4.3. Schlussfolgerungen zum Zugersee	156
6.5. Luganersee: Experimentelle Daten	157
6.5.1. Beschreibung des Luganersees	157
6.5.2. Temperatur, Leitfähigkeit und Sauerstoff	159
6.5.3. Tritium, Helium und Wasseralter	160
6.6. Vertikaler Diffusionskoeffizient im Luganersee	164
6.6.1. Berechnung von K_z mit der Bilanz-Gradient-Methode	164
6.6.2. Sensitivität des CHEMSEE-Modelles für K_z	165
6.6.3. Austauschraten in 2-Box-Modellen	167
6.7. Weitere Prozessparameter im Luganersee	167
6.7.1. Gasaustauschgeschwindigkeit	167
6.7.2. Heliumfluss aus dem Untergrund	168
6.7.3. Sauerstoffzehrung	171
6.8. Die langfristige Entwicklung des Luganersees	173
6.8.1. Reproduktion der heutigen Profile	173
6.8.2. Der Heliumfluss im Langzeitmodell und ein Vergleich der Ansätze	176
6.8.3. Die zeitliche Entwicklung der Modellvariablen	177
6.8.4. Schlussfolgerungen zum Luganersee	180
7. Isopyknischer Austausch in einem gegliederten See ...	181
7.1. Der Vierwaldstättersee	181
7.1.1. Geographische und limnologische Beschreibung	181
7.1.2. Die Einfluss äusserer Bedingungen	184
7.1.3. Bisherige Untersuchungen dichtegetriebener Strömungen	187
7.1.4. Konzept und Durchführung der Probenahmen	188
7.2. Die Verteilung von Temperatur, Leitfähigkeit und Dichte	189
7.2.1. Temperatur- und Leitfähigkeitsverteilung	189
7.2.2. Jahresverlauf der Dichteverteilung	195
7.2.3. Dichtedifferenzen und Einschichtungstiefen	196
7.3. Nachweis der Austauschströmungen über die Schwellen	198
7.3.1. Die Leitfähigkeit als Tracer für Einschichtungen	198
7.3.2. Direkte Messung der Strömung über die Schwelle bei den Nasen ..	200
7.3.3. Abschätzung des Massenflusses aus hydraulischen Bedingungen ..	202
7.4. Zeitliche Entwicklung und räumliche Verteilung des Wasseralters	203
7.4.1. Die Entwicklung von Tritium und Wasseralter in den Teilbecken ..	203
7.4.2. Die Verteilung von Tritium und Wasseralter im gesamten See	208

7.5. Ausmass und Ursprung der Tiefenwassererneuerung	214
7.5.1. Austauschraten in 2-Box-Modellen	215
7.5.2. Quantifizierung ausgewählter Austauschvorgänge	217
7.5.3. Zusammenfassung der Ergebnisse zur Tiefenwassererneuerung ...	220
7.6. Heliumfluss und Sauerstoffzehrung	221
7.6.1. Radiogenes Helium im Vierwaldstättersee	221
7.6.2. Sauerstoffzehrung im Vierwaldstättersee	224
7.6.3. Vergleich der Sauerstoffzehrung in verschiedenen Seen	228
8. Mantelheliumfluss in einem vulkanischen Kratersee ..	231
8.1. Der Laacher See	231
8.1.1. Geographische und limnologische Beschreibung	231
8.1.2. Vulkanismus und Gasaustritte in der Region des Laacher Sees	232
8.1.3. Experimentelle Daten	233
8.2. Charakterisierung der Fluide im Laacher See und der Eifel	236
8.2.1. Das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis im Laacher See	236
8.2.2. $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnisse im gesamten Eifelgebiet	238
8.2.3. Kohlenstoff/ ^3He -Verhältnisse in der Eifel	240
8.2.4. Neonisotope in der Eifel	240
8.3. Bestimmung des Heliumflusses	242
8.3.1. Einfache Boxbilanzen	242
8.3.2. Berechnung von K_z aus der Temperaturbilanz	243
8.3.3. Der Heliumfluss im CHEMSEE-Modell	245
8.3.4. Der CO_2 -Fluss im Laacher See	248
8.4. Vergleich mit anderen vulkanischen Kraterseen	248
9. Literaturverzeichnis	250
Anhang	261
A) Tritiumeintragsdaten für die Schweiz (zu Kap. 2.4.3)	261
B) Wasseralter in den Boxen des Vierwaldstättersees (zu Kap. 7.5.1)	262
C) Zusammenstellung der Messdaten von den ^3H -He-Proben	263
C1) Zugersee (zu Kap. 6.1.3)	263
C2) Luganersee (zu Kap. 6.5.3)	265
C3) Vierwaldstättersee (zu Kap. 7.4)	266
C4) Laacher See (zu Kap. 8.1.3)	271

Kurzfassung

Der radioaktive Zerfall von ^3H (Tritium) zu ^3He mit einer Halbwertszeit von 12.4 Jahren bietet die Möglichkeit, die effektive Isolationszeit eines Wasserkörpers von der Atmosphäre zu messen. Dieses Zeitmass, ^3H - ^3He -Wasseralter genannt, kann zur Quantifizierung von Prozessraten in der Hydrosphäre verwendet werden. Helium ist für sich ein bedeutender geochemischer Tracer für Fluide aus dem Erdinnern.

Helium und Tritium werden massenspektrometrisch analysiert. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die von Kipfer (1991) aufgebaute und beschriebene Messapparatur für ausgedehnte Seestudien eingesetzt und gleichzeitig laufend verbessert. Die Reproduzierbarkeit von Helium- und Neonkonzentrationen liegt zwischen 0.6 und 1%, für das $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis ist sie besser als 0.5 %. Tritium wird in Routineproben mit einer Genauigkeit von 2 bis 3 % und einer Nachweisgrenze von 0.5 TU gemessen, aber beide Parameter können durch Verwendung grösserer Proben um eine Grössenordnung gesenkt werden. Die in Oberflächenwasser aus Seen gemessenen Konzentrationen beider leichten Edelgase weichen weniger als 1 % von den für Gleichgewicht mit der Atmosphäre erwarteten Werten nach Weiss (1971) ab. Die beobachteten He/Ne-Verhältnisse passen jedoch besser zu den Löslichkeitsdaten von Top et al. (1987).

Es wird gezeigt, wie Helium aus anderen Quellen als dem Tritiumzerfall identifiziert werden kann, um das für die Bestimmung des Wasseralters benötigte tritiogene ^3He zu berechnen. Die Interpretation des Wasseralters in nicht vollständig abgeschlossenen Systemen, wie dem Tiefenwasser von Seen, wird diskutiert. Die Entwicklung des Wasseralters wird mittels Seemodellen verschiedener Komplexität untersucht. Diese Modelle dienen als Grundlage für die Bestimmung der Parameter physikalisch-limnologischer Prozesse wie Wasseraustauschraten, vertikale turbulente Diffusivität, Gasaustauschgeschwindigkeit, Sauerstoffzehrung und Heliumfluss aus dem Untergrund.

Bei der Anwendung der Methode konzentrierte ich mich auf vier Seen, die drei zentrale Themenkreise repräsentieren:

- Das Ausmass der *vertikalen Mischung in tiefen meromiktischen Seen* wird im *Zuger- und Luganersee* bestimmt. Als Folge der Eutrophierung haben sich in diesen Seen permanent anoxische Tiefenwasserkörper gebildet. Die ^3H - ^3He -Wasseralter belegen, dass dennoch eine gewisse Erneuerung durch vertikale turbulente Diffusion stattfindet. Dieser Prozess kann aus der ^3He -Bilanz zuverlässiger quantifiziert werden als mit Hilfe der Temperatur. Numerische Modelle erlauben Rückschlüsse auf die Mischungsintensität in den letzten 40 Jahren. Die effektive jährliche Zufuhr von Oberflächenwasser ins tiefe Hypolimnion beträgt im Zugersee rund 20 %, im Luganersee nur 5 % des jeweiligen Tiefenwasservolumens.

- Der *dichtgetriebene Wasseraustausch über Schwellen zwischen Teilbecken* wird im Vierwaldstättersee untersucht. Dieser subalpine See ist durch drei hohe und zwei weniger ausgeprägte Schwellen in vier Hauptbecken und zwei kleinere Tiefenwasserkörper unterteilt. Unterschiede im Salzgehalt der Zuflüsse sowie in der Windexposition führen zum Aufbau horizontaler Dichtegradienten im Winter und Frühjahr. Diese Gradienten treiben Strömungen an, die mit ^3He verfolgt werden können und die signifikant zur Erneuerung von mindestens vier der sechs Tiefenwasserkörper beitragen. Trotzdem bleibt die übliche windinduzierte vertikale Mischung innerhalb der vier Hauptbecken der dominante Prozess für die Erneuerung des Tiefenwassers.
- Der *Fluss von Fluiden aus dem Erdmantel* in vulkanischen Gebieten wird im Laacher See, einem Maarsee in Deutschland, studiert. Helium mit einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis von $7.4 \cdot 10^{-6}$ ($5.4 R_a$), was den Ursprung aus dem Mantel klar anzeigt, tritt zusammen mit CO_2 in diesen See ein. Aus der Verdoppelung des Heliuminhaltes zwischen Mai und September 1991 konnte der Heliumfluss von $1.0 \cdot 10^{13}$ ^4He Atomen $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ direkt abgeleitet werden. Mit dem in Gasen aus dem Laacher See gemessenen $\text{C}/^3\text{He}$ -Verhältnis von ca. $5 \cdot 10^9$ ergibt sich ein jährlicher CO_2 -Umsatz von mindestens 3000 Tonnen.

Drei weitere Prozesse wurden in den obengenannten Schweizer Seen (Zuger-, Luganer- und Vierwaldstättersee) untersucht:

- *Sauerstoffzehrungsraten* können einfach quantifiziert werden mit Hilfe der Korrelation zwischen Sauerstoffdefizit und Wasseralter. Die resultierenden Zehrungsraten sind korreliert mit dem Verhältnis von Sedimentfläche zu Volumen der jeweiligen Seen.
- Der *Fluss von krustalem Helium* kann analog aus der Korrelation von Heliumüberschuss und Wasseralter bestimmt werden. Die gemessenen Flüsse sind vergleichbar mit Abschätzungen des kontinentalen Mittels ($\approx 3 \cdot 10^{10}$ ^4He Atome $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$), mit Ausnahme des Urnersees, eines Beckens des Vierwaldstättersees, wo der Fluss um mindestens einen Faktor fünf höher ist.
- Die Bestimmung der *Gasaustauschgeschwindigkeit* verlangt eine sorgfältige Überwachung der Heliumkonzentration an der Oberfläche. Da sich diese Arbeit auf die Entwicklung im Tiefenwasser konzentriert, wurden nur wenige Abschätzungen des Gasaustausches durchgeführt. Die Werte liegen im erwarteten Bereich um 1 m/d.

Abstract

The radioactive decay of ^3H (tritium) to ^3He with a half-life of 12.4 years offers an opportunity to measure the effective time of isolation of a water mass from the atmosphere. This timescale, called ^3H - ^3He water mass age, can be used to quantify process rates in the hydrosphere. Helium on its own is an important geochemical tracer for volatiles from the interior of the earth.

Helium and tritium are analysed by mass spectrometry. In the course of this work, the experimental setup developed and described by Kipfer (1991) was continuously improved and simultaneously used for extensive lake studies. The reproducibility of helium and neon concentrations lies between 0.6 and 1%, for the $^3\text{He}/^4\text{He}$ -ratio it is below 0.5 %. Routine tritium samples are measured with a precision of 2 to 3 % and a detection limit of 0.5 TU, but both parameters can be lowered by an order of magnitude if larger samples are used. The measured concentrations of the two light noble gases in surface water of lakes are within 1 % of the values expected for equilibrium with the atmosphere, as given by Weiss (1971). However, the observed He/Ne ratios are more consistent with the solubility data of Top et al. (1987).

It is shown how helium from other sources than tritium decay can be identified in order to calculate the tritiogenic ^3He needed for the evaluation of a water mass age. The interpretation of such ages in not completely closed systems, as the deep waters in lakes, is discussed. The evolution of the water mass age is investigated with the aid of lake models of different complexity. These models serve as a basis to determine the parameters of physical processes, such as water exchange rates, vertical turbulent diffusivity, gas transfer velocity, oxygen utilization rate and helium flux from the earth.

In applying the method I focused on four lakes which represent three main topics:

- *Vertical mixing in deep meromictic lakes* is determined in *Lakes Zug* and *Lugano*. The eutrophication of these lakes has resulted in the formation of permanently anoxic deep water layers. ^3H - ^3He water mass ages reveal that a certain renewal of the deep water by vertical eddy diffusion still occurs. This process can more reliably be quantified from the mass balance of ^3He instead of temperature. Numerical models allow conclusions about the intensity of vertical mixing in the past 40 years. The yearly input of surface water in the deep hypolimnion amounts in Lake Zug to about 20 %, in Lake Lugano only to 5 % of the respective deep water volumes.
- *Water exchange due to density driven currents over sills between basins* is investigated in *Lake Lucerne*. Three high and two less pronounced sills divide this subalpine lake in four main basins and two smaller deep water volumes. Differences in the salinities of tributary rivers as well as in the exposure to wind cause horizontal density

gradients to evolve in winter and spring. These gradients drive currents that can be traced by ^3He and that contribute significantly to the renewal of at least four of the six deep water masses. However, the usual wind induced vertical mixing within the four main basins remains the dominant process for deep water renewal.

- The *flux of volatiles from the earth's mantle* in volcanic areas is studied in *Laacher See*, a maar lake in Germany. Helium with a $^3\text{He}/^4\text{He}$ -ratio of $7.4 \cdot 10^{-6}$ ($5.4 R_a$), clearly indicating mantle origin, enters this lake together with CO_2 . From the observed doubling of the lake's helium content between may and september 1991 the helium flux of $1.0 \cdot 10^{13} \text{ } ^4\text{He atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ could directly be deduced. Together with the $C/^3\text{He}$ -ratio of about $5 \cdot 10^9$ measured in gases from Laacher See this yields a yearly turnover of CO_2 of at least 3000 tons.

Three further processes were investigated in the above mentioned Swiss lakes (Zug, Lugano, Lucerne):

- *Oxygen utilization rates* can easily be quantified using the correlation between oxygen depletion and water mass age. The resulting utilization rates are correlated with the ratio of sediment area to volume of the respective lakes.
- The *flux of crustal helium* can analogously be determined from the correlation of helium excess and water mass age. The measured fluxes are comparable to estimates of the continental mean ($\approx 3 \cdot 10^{10} \text{ } ^4\text{He atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$), with the exception of Urnersee, a basin of Lake Lucerne, where the flux is higher by at least a factor of five.
- Determination of *gas transfer velocities* requires careful observation of the helium excess near the water surface. Since this work focuses on the evolution of the deep water, only a few estimates of gas transfer velocities were made. The results lie in the expected range around 1 m/d.

Notation

Allgemeine Bemerkungen:

- Unsicherheiten werden immer als 1σ -Fehler angegeben (68 % Vertrauensintervall).
- Einheiten werden in eckigen Klammern [] angeführt.
- Vektoren werden fett geschrieben.
- Folgende oft verwendete Indizes stehen für:
 - a: atmosphärisch, in der Atmosphäre *oder* für Abfluss
 - e: Evaporation
 - eq: equilibrium: im Gleichgewicht (mit der Atmosphäre)
 - ex: excess: Überschuss (relativ zum Gleichgewicht)
 - man: aus dem Erdmantel
 - p: precipitation: im Niederschlag
 - rad: radiogen (durch radioaktiven Zerfall gebildet)
 - s: surface: an der Wasseroberfläche
 - ter: terrigen (aus der Erde stammend)
 - tri: tritiogen (durch Tritiumzerfall gebildet)
 - w: im Wasser
 - 0: Anfangswert (bei $t = 0$)
 - ∞ : im Stationärzustand (nach unendlich langer Zeit)

Tabelle der verwendeten Symbole

Symbol	Bezeichnung	Einheiten
$a(z)$	Orographische Funktion	m^{-1}
A_0	Seeoberfläche	m^2, km^2
$A(z)$	Seequerschnittsfläche in der Tiefe z	m^2, km^2
ΔA	Sedimentfläche einer horizontalen Schicht	m^2, km^2
c	(Integrations-) Konstante, Faktor	div.
$C_{(i)}$	Konzentration (der Substanz i)	$mol/l, kg/m^3, \dots$
$C_{a(w)}^\infty$	C in der freien Atmosphäre (im freien Wasser)	$mol/l, kg/m^3, \dots$
$C_{a(w)}^{eq}$	C im Lösungsgl.gew. in der Atmosph. (im Wasser)	$mol/l, kg/m^3, \dots$
$D_{(i)}$	Molekularer Diffusionskoeffizient (der Substanz i)	m^2/s
D	Advektions-Diffusionsoperator	-
e	Wasserdampf-Partialdruck in der Atmosphäre	Pa, mbar, atm...
e_s	Sättigungswasserdampfdruck	Pa, mbar, atm...
e_{eq}	Wasserdampfdruck im Gl.gew. mit dem Wasser	Pa, mbar, atm...
E	Evaporation (Nettoverdunstung, $E = V - K$)	m/a
f	relative Feuchtigkeit	-
F	Froude-Zahl	-
$F_{(i)}$	Fluss (der Substanz i)	Atome $m^{-2} s^{-1}, \dots$

$F_{a(w)}$	Fluss in der Luft- (Wasser-) Grenzschicht	Atome $m^{-2} s^{-1}, \dots$
F_{th}	(geothermischer) Wärmefluss	W/m^2
FA	Fastcal-Amounts (virtuelle Eichgasmengen)	cm^3STP
h	normalisierte relative Feuchtigkeit	-
h	Tiefe ($h = h_{max} - z$)	m
h	Boxtiefe (mittlere Tiefe des entspr. Volumens)	m
\bar{h}	mittlere Seetiefe	m
$h_{epi(mix)}$	Epilimniontiefe (Tiefe der durchmischten Schicht)	m
h_{max}	maximale Seetiefe	m
H	Skalenhöhe in der Barometerformel	m
H	= $[^3He_{tri}]$, tritiogene 3He -Konzentration	TU, cm^3STP/g
$H_{(i)}$	Henrykoeffizient (der Substanz i)	$atm l mol^{-1}$
$H'_{(i)}$	dimensionsloser Henrykoeffizient	-
3H	Tritiummenge	Atome, mol, g, ...
$[^3H]$	Tritiumkonzentration im Wasser	TU, Atome/g, ...
He, iHe	Gasmenge Helium bzw. He-Isotop i	cm^3STP
$[^iHe]$	iHe -Konzentration im Wasser	cm^3STP/g
$[^iHe]_{eq}$	$[^iHe]$ im Lösungsgleichgewicht mit der Atmosph.	cm^3STP/g
Δ^iHe	Relative Abweichung zw. $[^iHe]$ und $[^iHe]_{eq}$	%
$^3He_{tri}$	tritiogenes 3He	cm^3STP
3He_L	während Lagerung im Labor entstandenes tritiogenes 3He in der Probe für die 3H -Bestimmung	cm^3STP
3He_W	während Wartezeit vor der HeNe-Messung im Labor entstandenes tritiogenes 3He	cm^3STP
δ^3He	Relative Abweichung zw. R ($^3He/^4He$) und R_a	%
δ^3He_{eq}	δ^3He im Lösungsgleichgewicht mit der Atmosph.	$\approx -1.7 \%$
[i]	Konzentration des Gases i im Wasser	cm^3STP/g
$J_{(tot)}$	(totale) Sauerstoffzehrungsrate	$g m^{-3} a^{-1}$
$J_{V(A)}$	Volumen- (Flächen-) Sauerstoffzehrungsrate	$g m^{-3(2)} a^{-1}$
k	Zerfallsrate, Abbaurrate, Austauschrate	s^{-1}
k_q	Wasseraustauschrate, $k_q = Q/V$	s^{-1}
k_{ij}	Wasseraustauschrate in Box j durch Fl. aus Box i	s^{-1}
$k_{He(3)}$	Gasaustauschrate für Helium (3He)	s^{-1}
K	Kondensation	m/a
K_z	vertikaler Diffusionskoeffizient	$m^2/s, cm^2/s$
l	Länge, Distanz	m
m	Masse	kg, g
$m_{He(Tr)}$	Probengewicht bei der HeNe- (3H -) Bestimmung	g
Δm	Wasserverlust zw. HeNe- und 3H -Bestimmung	g
M_i	Molekulargewicht der Substanz i	g/mol
n, N	Anzahl (z. B. Ereignisse, Ionen etc.)	-
n_i	Anzahl Mole des Gases i	-
N	$^{20}Ne/^4He$ -Verhältnis	-

N^2	Quadrat der Stabilität oder Brunt-Väisälä Frequenz	s^{-2}
Ne, ${}^i\text{Ne}$	Gasmenge Neon bzw. Ne-Isotop i	cm^3STP
$[{}^i\text{Ne}]$	${}^i\text{Ne}$ -Konzentration im Wasser	$\text{cm}^3\text{STP/g}$
$[{}^i\text{Ne}]_{\text{eq}}$	$[{}^i\text{Ne}]$ im Lösungsgleichgewicht mit der Atmosph.	$\text{cm}^3\text{STP/g}$
$\Delta^i\text{Ne}$	Relative Abweichung zw. $[{}^i\text{Ne}]$ und $[{}^i\text{Ne}]_{\text{eq}}$	%
ΔO_2	Sauerstoffdefizit (Differenz zur Sättigungskonz.)	g m^{-3}
p	Zählrate auf dem ${}^3\text{He}$ -Peak	Ionen/s
p	(Luft-) Druck	Pa, mbar,...
p_i	Partialdruck des Gases i	Pa, mbar,...
q	topographischer Exponent	-
Q	Wasserdurchfluss	m^3/s
Q_{ij}	Wasseraustauschfluss von Box i nach Box j	m^3/s
r	Erneuerungsrate im "surface renewal" Modell	s^{-1}
R	${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ -Verhältnis	-
R_p	Dichtegradientenverhältnis	-
S	Salinität	‰, g/kg
S_i	Quelle oder Senke des Stoffes i	$\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}, \dots$
Sc	Schmidt-Zahl ($Sc = \nu/D$)	-
t	Zeit	s, d, a
t_{Pn}	Zeitpunkt der Probenahme	d
$t_{\text{He (Tr)}}$	Zeitpunkt der He-Ne-Messung (${}^3\text{H}$ -Bestimmung)	d
t_L	Lagerungszeit für Tritiumzerfall ($t_L = t_{\text{Tr}} - t_{\text{He}}$)	d
t_W	Wartezeit vor He-Ne-Messung ($t_W = t_{\text{He}} - t_{\text{Pn}}$)	d
T	Temperatur	°C, K
T	= $[{}^3\text{H}]$, Tritiumkonzentration	TU
$u_{(10)}$	Windgeschwindigkeit (in 10 m Höhe)	m/s
\mathbf{v}, v	Strömungsgeschwindigkeit	m/s
v_g	Gasaustauschgeschwindigkeit	m/d
$v_{\text{He (3, 4)}}$	Gasaustauschgeschw. von Helium (${}^3\text{He}, {}^4\text{He}$)	m/d
v_w	Wasserdampfaustauschgeschwindigkeit	m/d
V	Verdunstung	m/a
V	Volumen	m^3, km^3
ΔV	Volumen einer horizontalen Schicht	m^3, km^3
V_{ex}	zwischen 2 Boxen ausgetauschtes Volumen	m^3, km^3
V_D	Tiefenwasservolumen	m^3, km^3
V_i^{STP}	Vol. von n_i Molen des Gases i bei Standardbeding.	cm^3/mol
w	z-Komponente der Geschwindigkeit \mathbf{v}	m/s
x	beliebige Variable	div.
X	= H/T , ${}^3\text{He}_{\text{tri}}/{}^3\text{H}$ -Verhältnis	-
z	z-Koordinate, Höhe über Grund ($z = h_{\text{max}} - h$)	m
z	Höhe über Meer	m
$z_a(w)$	Dicke der Luft- (Wasser-) Grenzschicht	m

α	Mischungsparameter ($0 \leq \alpha \leq 1$)	-
α	thermischer Ausdehnungskoeffizient	K^{-1}
α, α^*	Fraktionierungskoeffizienten (${}^3\text{He}/{}^4\text{He}, {}^3\text{H}/\text{H}$)	-
β_i	Bunsenkoeffizient der Substanz i	$\text{cm}^3\text{STP}/\text{cm}^3$
β_κ	haliner Kontraktionskoeffizient	$(\mu\text{S}/\text{cm})^{-1}$
γ	Relativer Fehler der ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ -Verhältnismessung	-
δx	Experimenteller Fehler (1σ) der Grösse x	div.
δ_{ij}	Kronecker-Symbol	-
Θ	Verhältnis zweier Tritiumkonzentrationen	-
$\kappa_{(20)}$	elektrische Leitfähigkeit (bei 20°C)	$\mu\text{S}/\text{cm}$
Λ_i	Löslichkeitskoeffizient der Substanz i	$\text{cm}^3\text{STP g}^{-1} \text{atm}^{-1}$
μ	Mittelwert	div.
ν	kinematische Viskosität	m^2/s
ξ	= H + T, "stabiles Tritium"	TU
$\rho_{(w)}$	Dichte (des Wassers)	kg/m^3
σ	Streuung, Standardabweichung	div.
τ	Wasseralter	a
$\tau_{g(3)}$	Zeitkonstante des Gasaustausches (für ${}^3\text{He}$)	d

Tabelle der verwendeten Konstanten

Konstante	Bezeichnung	Wert	Einheit
c_p	spezifische Wärme des Wassers	$4.18 \cdot 10^6$	$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$
g	Erdbeschleunigung	9.81	m/s^2
$M_{\text{H}_2\text{O}}$	Molekulargewicht von Wasser	18.015	g/mol
N_A	Avogadrozahl	$6.0221 \cdot 10^{23}$	Atome mol^{-1}
$({}^{20}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne})_a$	${}^{20}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne}$ in der Atmosphäre	9.80	-
$({}^{20}\text{Ne}/{}^{21}\text{Ne})_a$	${}^{20}\text{Ne}/{}^{21}\text{Ne}$ in der Atmosphäre	338	-
$({}^{21}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne})_a$	${}^{21}\text{Ne}/{}^{22}\text{Ne}$ in der Atmosphäre	0.029	-
$({}^{20}\text{Ne}/\text{Ne}_{\text{tot}})_a$	${}^{20}\text{Ne}/\text{Ne}_{\text{tot}}$ in der Atmosphäre	0.905	-
p_0	Standard Druck	1	atm
R	Universelle Gaskonstante	8.3145	$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
R_a	${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ in der Atmosphäre	$8.2058 \cdot 10^{-2}$	$\text{l atm mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
T_0	Standard Temperatur	$1.384 \cdot 10^{-6}$	-
$T_{1/2}$	${}^3\text{H}$ -Halbwertszeit ($= \ln 2/\lambda$)	273.15	K
V_0	Standard Molvolumen	12.43	a
x_{He}^a	He-Anteil in trockener Luft	22414	cm^3/mol
x_{Ne}^a	Ne-Anteil in trockener Luft	5.24	ppmV
λ	${}^3\text{H}$ -Zerfallskonstante	18.18	ppmV
τ_{Tr}	Lebensdauer des Tritiums ($=1/\lambda$)	0.05576	a^{-1}
		17.93	a

1. Einleitung und Fragestellungen

1.1. Motivation

Seen sind mehr als nur Wasser- und Nahrungsquellen. Sie üben einen besonderen Reiz auf uns Menschen aus. Einerseits laden sie zu verschiedensten sportlichen Aktivitäten ein, andererseits geht von ihnen oft eine Atmosphäre der Ruhe und Beschaulichkeit aus. Nicht umsonst erhöht das Attribut "Seesicht" die Anziehungskraft einer Wohnlage.

Vielleicht liegt es an diesem emotionalen Bezug, dass die Verschmutzung von Seen zu den am frühesten erkannten und bekämpften Umweltproblemen gehört. Die moderne Gesellschaft hat den Seen mit ihrem Abwasser ein Übermass an Algennährstoffen (v. a. Phosphor) zugeführt, man spricht von Eutrophierung. Die bekannten Folgen sind Algenblüten und Fischsterben. Beim mikrobiellen Abbau der toten Algenbiomasse wird der im Wasser gelöste Sauerstoff verbraucht, was den Fischen die Lebensgrundlage entzieht. Sauerstoffmangel im Tiefenwasser ist das zentrale ökologische Problem unserer Seen. Im Gewässerschutzgesetz ist ein Qualitätsziel für den Sauerstoffgehalt (mindestens 4 mg/l) festgelegt.

Neben den biochemischen Vorgängen bestimmen zwei physikalische Prozesse den Sauerstoffhaushalt entscheidend mit: Gasaustausch und Erneuerung des Tiefenwassers. Der erste Prozess reguliert die Nachlieferung aus der Atmosphäre, der zweite den Transport in die Tiefe, wo der Sauerstoff am dringendsten benötigt wird. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit einer Methode, die u. a. zur Quantifizierung der Prozessraten von Gasaustausch und Tiefenwassererneuerung eingesetzt werden kann. Sie basiert auf der Messung der Konzentrationen der beiden Spurenstoffe (Tracer) Tritium und Helium.

1.2. Grundlagen der physikalischen Limnologie

Entscheidend für das Verständnis physikalischer Prozesse in Seen ist die Tatsache, dass Wasser bei ca. 4 °C ein Dichtemaximum aufweist. Viergrädiges Wasser sinkt daher unter dem Einfluss der Gravitation ins Tiefenwasser (Hypolimnion) ab. Im Sommer wird die Oberflächenschicht (Epilimnion) stark erwärmt. Die entstehende Dichteschichtung (Stratifikation) kann nur unter grossem Energieaufwand durchbrochen werden. Die Flächen gleicher Dichte (Isopyknen) liegen gewöhnlich nahezu horizontal im See und werden höchstens durch stehende Schwingungen des Wasserkörpers (interne Seiches) ausgelenkt. Strömung und Mischung entlang der Isopyknen (isopyknisch, meist \approx horizontal) sind um Grössenordnungen stärker als in Querrichtung (diapyknisch, \approx vertikal). Deshalb werden Seen oft als horizontal homogen aber vertikal geschichtet betrachtet.

Die z. B. für den Sauerstoffgehalt im Hypolimnion entscheidende Erneuerung des Tiefenwassers kann auf zwei grundsätzlich verschiedene Arten erfolgen:

Advektion

Unter Advektion versteht man grossräumige Strömungen, durch die ganze Wasserpakete verfrachtet werden. Durch horizontale Unterschiede z. B. in der Abkühlung an der Oberfläche können lokal dichtere Wasserpakete entstehen, die als Ganzes absinken und das Tiefenwasser ersetzen. Bei Seen mit komplizierter Topographie (Teilbecken, flache Buchten etc.) können anhaltende dichtegetriebene Strömungen entstehen.

Diffusion

Die molekulare Diffusion bewirkt einen allgegenwärtigen, kontinuierlichen Stofftransport entlang von Konzentrationsgradienten. In Seen dominiert jedoch gewöhnlich nicht die molekulare, sondern die sogenannte turbulente oder Wirbel-Diffusion (eddy diffusion). Sie beruht darauf, dass die Wirkung kleinräumiger, statistisch verteilter Advektion (Turbulenz) auf grösseren Skalen analog zur molekularen Diffusion beschrieben werden kann.

Das klassische Bild der Tiefenwassererneuerung durch eine sogenannte *Zirkulation* (turnover) enthält beide Elemente, Advektion und Diffusion: Infolge oberflächlicher Abkühlung und Windreibung sinkt im Winter die thermische Grenzschicht (Sprungschicht, Thermokline) zwischen Epi- und Hypolimnion immer weiter ab, bis sie schliesslich ganz verschwindet. Dann kann das gesamte Seebecken von einer grossräumigen Zirkulation erfasst werden. Die damit verbundene kleinskalige Turbulenz führt letztlich zu einem völligen Ausgleich aller vertikalen Gradienten. Dies benutzen wir im Sinne von Van Senden et al. (1990) als Kriterium für vollständige Tiefenzirkulation.

Seen die regelmässig im Winter vollständig zirkulieren, heissen holomiktisch. Im Gegensatz dazu vermag die winterliche Zirkulation in meromiktischen Seen nicht bis zum Grund vorzudringen. Eine Ursache für Meromixis ist oft eine chemische Stabilisierung der Wassersäule durch eine Zunahme der Konzentration gelöster Ionen (Salzgehalt, Salinität) mit der Tiefe. Im Bereich des Dichtemaximums bei 4 °C ist der Einfluss der Temperatur auf die Dichte so gering, dass auch kleine Gradienten im Salzgehalt, wie sie in Süsswasserseen vorkommen, eine wichtige Rolle spielen können.

1.3. Tritium und Helium als hydrologische Tracer

Die Geschichte von Tritium (^3H) und Helium als Tracer in der Hydrologie begann in den 50er und anfangs der 60er Jahre mit der massiven Tritiumfreisetzung bei Tests thermonuklearer Bomben in der Atmosphäre. Schon bald wurde erkannt, dass das radio-

aktive, überschwere Wasserstoffisotop ^3H ein idealer Tracer für hydrologische Prozesse aller Art ist (z. B. Begemann und Libby, 1957; Suess, 1969). Unter Obhut der IAEA (International Atomic Energy Agency) entstand ein weltweites Messnetz zur Überwachung der Tritiumkonzentrationen im Niederschlag (z. B. IAEA, 1992). Diese Daten bilden eine wichtige Grundlage für Traceranwendungen von Tritium. Die Geschichte des Bombentritiums ist ein treffendes Beispiel für ein ungeplantes und an sich unerwünschtes, aber interessantes globales Umweltexperiment.

Die logische Ergänzung zum Tritium ist sein stabiles Tochterprodukt ^3He , das durch β -Zerfall mit einer Halbwertszeit von 12.4 Jahren gebildet wird. Das Verhältnis $^3\text{He}/^3\text{H}$ liefert ein von der Kenntnis des Tritiumeintrages unabhängiges Zeitmass. Solange Wasser im Kontakt mit der Atmosphäre steht, wird das tritiogene (aus dem ^3H -Zerfall stammende) ^3He mit dieser ausgetauscht. Wird der Austausch unterbunden, so akkumuliert tritiogenes ^3He ; die ^3H - ^3He -Uhr läuft. Eine Trennung von der Atmosphäre erfährt ein Wasserpaket z. B. bei der Infiltration ins Grundwasser oder beim Abtauchen ins Tiefenwasser von Ozeanen und Seen. Das ^3H - ^3He -Alter, das wir als Wasseralter bezeichnen, misst somit im Idealfall die Dauer der Isolation des Pakets von der Atmosphäre.

Den gemeinsamen Einsatz von ^3H und ^3He erschwerten lange Zeit die sehr unterschiedlichen analytischen Methoden. Tritium wird traditionell via β -Zerfallszählung gemessen. Für die Bestimmung des seltenen Heliumisotopes ^3He kommt nur spezialisierte Edelgasmassenspektrometrie in Frage. Clarke et al. (1976) führten die Messung von Tritium via massenspektrometrische Bestimmung des Zerfallsproduktes ^3He ein. Diese " ^3He -Nachwachsmethode" setzte nicht nur die Nachweisgrenze für Tritium um Größenordnungen herab, sondern vereinte auch die analytischen Methoden für das ^3H - ^3He -System.

Schon zuvor war Helium unabhängig vom Tritium als interessanter Tracer für die Ozeanographie entdeckt worden. Im Tiefenwasser des Pazifiks fanden Clarke et al. (1969) entgegen ihren Erwartungen nicht ^4He aus dem Zerfall von Uran und Thorium in der Erdkruste, sondern überschüssiges ^3He . Da Tritium nicht in nennenswerten Mengen ins pazifische Tiefenwasser vordringen kann, kommt nur das tiefere Erdinnere, der Erdmantel, als Quelle für dieses ^3He in Frage. Neben der grossen erdwissenschaftlichen Bedeutung dieser Entdeckung wurde auch sofort das Potential des Mantelheliums als ozeanographischer Tracer erkannt und genutzt. In Kombination mit der ^3H - ^3He -Methode in oberflächennahen Schichten ist die Heliummassenspektrometrie zu einem wichtigen analytischen Hilfsmittel in der physikalischen Ozeanographie geworden.

Pionierarbeit bei der Anwendung der ^3H - ^3He -Methode in Seen leisteten Torgersen et al. (1977, 1979). Diese Autoren zeigten, dass physikalisch-limnologische Prozesse wie Gasaustausch, vertikale turbulente Diffusion, Sauerstoffzehrung und generell Stoffflüsse mit diesem Tracerpaar quantifiziert werden können. Trotz interessanter Ergebnisse

hat aber die Methode in der physikalischen Limnologie nicht eine zur Ozeanographie vergleichbare Stellung erlangt. Ein Grund dafür mag der für die Limnologie ungewöhnlich grosse analytische Aufwand sein. Vielleicht liegt es auch nur daran, dass ein Zusammentreffen von Spezialisten der physikalischen Limnologie einerseits und der Edelgasmassenspektrometrie andererseits eher selten ist. Eine solche Kooperation ergab sich an der ETH Zürich, was das Zustandekommen dieser Arbeit erst ermöglichte.

1.4. Ausgangslage dieser Arbeit

Erst wenige Jahre vor Beginn der vorliegenden Arbeit hatte die Zusammenarbeit der Gruppe Umweltphysik – mit grosser Erfahrung in der physikalischen Limnologie – und des Labors für Isotopengeologie – spezialisiert auf Edelgasmassenspektrometrie – ihren Anfang genommen.

Das erste Produkt dieser Verbindung war die Dissertation von Rolf Kipfer (1991). Ein wesentlicher Teil jener Arbeit bestand im Aufbau der für die Extraktion und Aufbereitung von Helium aus Wasserproben notwendigen Apparatur. Die vorliegende Arbeit konnte somit auf eine voll einsatzbereite aber noch nicht im Routinebetrieb erprobte Apparatur abgestützt werden. Für die notwendige kontinuierliche Weiterentwicklung und Optimierung der Apparatur stand das Know-how aller am Aufbau beteiligten Personen weiterhin zur Verfügung, was sicherlich von unschätzbarem Wert war.

Das anwendungsbezogene Schwergewicht von Kipfers Arbeit lag auf dem geochemischen Aspekt des Heliums als Tracer für Mantelfluide. Neben Untersuchungen türkischer Thermalwässer wurden aber auch knapp 30 Seeproben analysiert. Als besonders interessant erwies sich dabei der osttürkische Vansee, bei dem erst die gemeinsame Berücksichtigung geochemischer und seephysikalischer Aspekte zu einem korrekten Verständnis der Daten führte (Kipfer, 1991; Kipfer et al., 1994).

Die Interpretation der Resultate vom Vierwaldstättersee (Alpnacher- und Gersauersee) blieb hingegen mangels Datendichte und seephysikalischer Erfahrung unvollständig. In seinem Schlusswort formulierte Kipfer (1991) eine Reihe offener Fragen, deren Beantwortung die vorliegende Arbeit zu erbringen versucht. Kipfers Fragen betreffen hauptsächlich die korrekte Interpretation des Wasseralters im Tiefenwasser von unregelmässig zirkulierenden Seen. Solche Wasserkörper scheinen weder vollständig abgeschlossen zu sein noch jemals ganz ins Gleichgewicht mit der Atmosphäre zu gelangen.

1.5. Fragestellungen

Die wichtigsten Fragestellungen, die in der vorliegenden Arbeit angegangen werden, ergeben sich aus der geschilderten Ausgangslage. Sie werden hier noch etwas detaillierter besprochen.

1.5.1. Physikalisch-limnologische Fragestellungen

Im Zentrum steht der Versuch, die im folgenden vorgestellten physikalisch-limnologischen Prozesse quantitativ zu erfassen.

Tiefenwassererneuerung durch vertikale Mischung

Das Wasseralter ist ein Mass für die Aufenthaltszeit im Tiefenwasser und somit für das Ausmass dessen Erneuerung. In holomiktischen Seen kann die jahreszeitliche Dynamik mit Zirkulation im Winter und Stagnation im Sommer studiert werden. Am interessantesten sind jedoch meromiktische Seen, wie schon Torgersen et al. (1977) im abschliessenden Satz ihrer Schlussfolgerungen feststellten: "It would be interesting to apply the method to meromictic lakes". Trotzdem gibt es unseres Wissens bislang kaum publizierte Studien über ^3H - ^3He -Alter in permanent stagnierenden Seen (zwei recht spezielle Fälle von Meromixis wurden von Campell und Torgersen (1980) sowie Torgersen et al. (1981) untersucht). In dieser Arbeit werden zwei tiefe stagnierende Seen, der Zuger- und der Luganersee untersucht. Dabei muss sorgfältig geprüft werden, wie das Wasseralter in diesen Systemen zu interpretieren ist. Schon einfache Überlegungen zeigen, dass auch durch eine vollständige vertikale Zirkulation keine Rückstellung des Alters auf null möglich ist. Weiter ist zu berücksichtigen, dass das Wasseralter unter Mischung von Wassermassen mit unterschiedlichen Tritiumkonzentrationen nicht erhalten bleibt. Die Frage ist, wieviel quantitative Information über die vertikale Mischung trotz dieser Komplikationen aus dem Wasseralter gewonnen werden kann und welche Methoden dabei anzuwenden sind.

Tiefenwassererneuerung durch isopyknische Austauschprozesse

Obwohl von zentraler Bedeutung bei ozeanographischen Anwendungen, sind isopyknische Prozesse in der Limnologie meist zu schnell, um sinnvoll mit dem ^3H - ^3He -System untersucht zu werden. Eine Ausnahme stellen topographisch gegliederte Seen dar, in denen das Schicksal unterschiedlicher Wassermassen verfolgt werden kann. Ein solcher See ist der Vierwaldstättersee, der sich schon aus infrastrukturellen Gründen als Untersuchungsobjekt anbot. Eine bereits in früheren Arbeiten (Wüest, 1987; Schlatter, 1991) entdeckte Besonderheit dieses Sees ist der massgeblich zur Tiefenwassererneuerung beitragende isopyknische Wasseraustausch zwischen den Teilbecken Gersauer- und Urnersee. Da diese beiden Becken sich ausserdem stark in ihrem vertikalen Mischungsverhalten unterscheiden, drängte sich ihr vergleichendes Studium mit der ^3H -

^3He -Methode geradezu auf. Die Beiträge von iso- und diapyknischen Prozessen zur Tiefenwassererneuerung ebenso wie die prinzipielle Eignung der Methode zum Studium isopyknischer Austauschprozesse sollte erforscht werden.

Gasaustausch

Die Bestimmung der Gasaustauschgeschwindigkeit zwischen See und Atmosphäre ist wichtiger Bestandteil vieler Arbeiten mit der ^3H - ^3He -Methode in Seen (z. B. Torgersen et al., 1977; Imboden et al., 1981; Jähne et al., 1984). Die prinzipielle Eignung der Methode zum Studium des Gasaustausches ist unbestreitbar, die genannten Arbeiten zeigen jedoch auch ihre Problematik. Die Schwierigkeit besteht in der ausreichend genauen Messung kleiner ^3He -Überschüsse an der Seeoberfläche. Das Problem wird durch abnehmende Tritiumkonzentrationen zunehmend verschärft. Die von Torgersen et al. (1982) gewählte Lösung mit künstlichem Tritiumeintrag ist nicht in unserem Sinn. Die Untersuchung des Gasaustausches steht daher eher am Rande dieser Arbeit, obwohl das Verständnis dieses Prozesses für die Interpretation von ^3H - ^3He -Daten unabdingbar ist.

Sauerstoffzehrung

Die beiden flüchtigen Gase Helium und Sauerstoff unterliegen denselben physikalischen Prozessen. Das Wasseralter als Isolationszeit bezüglich des Gasaustausches mit der Atmosphäre ist die natürliche Zeitskala für den ökologisch relevanten Prozess der Sauerstoffzehrung. Es stellt sich die Frage nach den Vor- und Nachteilen der Zehrungsbestimmung mit Hilfe des Wasseralters im Vergleich zu herkömmlichen Methoden.

1.5.2. Erdwissenschaftliche Fragestellungen

Die Ergebnisse vom Vansee machten deutlich, dass das ^3H - ^3He -System in Seen – wie im Ozean – nicht losgelöst vom geologischen Umfeld betrachtet werden kann. Helium aus dem Erdinnern (sog. terrigenes He) ist zunächst ein Störefield für seephysikalische Anwendungen. Es stellt sich die Frage, wie solches Helium erkannt und wegkorrigiert werden kann.

Aber das terrigene Helium besitzt auch seinen eigenen wissenschaftlichen Reiz. Aus dem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verhältnis kann auf seine Herkunft aus Erdkruste oder -mantel geschlossen werden, was weitere Rückschlüsse über die Struktur des Untergrundes erlaubt. Die Akkumulation von terrigenem Helium im Tiefenwasser stagnierender Seen ermöglicht die Bestimmung des Heliumflusses. Es sind Zusammenhänge mit dem Fluss von Wärme und anderen Fluiden (z. B. CO_2) aus dem Erdinnern zu erwarten. Eine wichtige Frage betrifft die Verbreitung und den Fluss von Mantelhelium in kontinentaler Umgebung. Deshalb wurden gezielt Seen in vulkanisch aktiven Gebieten beprobt. In ruhigeren Gebieten wie der Schweiz kann der Fluss von radiogenem Helium studiert werden.

1.5.3. Experimentelle Ziele

Die experimentelle Seite macht einen nicht zu unterschätzenden Anteil dieser Arbeit aus. Drei Ziele standen im Vordergrund.

Weiterentwicklung der bestehenden Apparatur für den Routinebetrieb

Zu Beginn war die Extraktionsapparatur kaum geeignet zur Messung mehrerer hundert Proben im Jahr. Fortlaufender Einbau automatisierter Bestandteile sollte die Operateure entlasten und einen höheren Probendurchsatz ermöglichen.

Qualitätskontrolle der Messungen

Die ^3H - ^3He -Methode stellt hohe Anforderungen an die Genauigkeit und Reproduzierbarkeit der Heliummessung, sowohl bezüglich Isotopenverhältnis als auch bezüglich Absolutkonzentrationen. Die Zuverlässigkeit des Systems muss kontinuierlich überwacht werden. Die Qualität der Resultate kann durch technische aber auch organisatorische Massnahmen verbessert werden (Stichwort Stabilität). Neben den Bemühungen um weitere Verbesserung sollte auch das bisher erreichte numerisch erfasst werden. Die Fehler der Einzelmessungen können in einer Fehlerrechnung unter Berücksichtigung der möglichen Fehlerquellen abgeschätzt werden. Durch wiederholte Messungen identischer Proben sollte geprüft werden, ob die so berechneten Fehler auch der tatsächlichen Reproduzierbarkeit entsprechen. Von grosser Wichtigkeit ist ferner der Vergleich der gemessenen Konzentrationen mit Löslichkeitswerten aus der Literatur.

Standardisierung der Datenauswertung

Im Verlauf eines Probenzyklus, der von der Probenahme über die Heliummessung bis zur Tritiumbestimmung reicht und typisch 4 bis 6 Monate dauert, werden die unterschiedlichsten Daten gesammelt, welche für die endgültige Auswertung benötigt werden. Es mussten daher Werkzeuge für eine übersichtliche und rationelle Verwaltung und Verarbeitung der Daten geschaffen werden. Das Vorgehen zur Berechnung des Wasseralters unter verschiedenen Korrekturen sollte standardisiert werden.