

CO₂ in Höhlenluft und an der Grenzfläche von Luft und Karstwasser – Messungen, Dateninterpretation, Modellierungskonzepte

Leon Keim, Ruben Joao & Holger Class

Zusammenfassung

Die große Bedeutung des Kohlendioxids (CO₂) für die Verkarstung ist offenkundig. Der Weg des CO₂, welches sich im Sickerwasser löst und mit diesem transportiert wird, ist ebenfalls gut verstanden. Ein bislang wenig beschriebener Prozess betrifft im Fall sehr geringer Fließgeschwindigkeiten den direkten Übergang von CO₂ aus der Luft in Wasserkörper und den dadurch ausgelösten Vorgang von konvektiv verstärkter Einlösung. Das Konzept der nerochytischen Speläogenese wurde von SCHERZER et al. (2017) vorgestellt; es nimmt an, dass die konvektiv verstärkte CO₂-Lösung in (quasi-)stagnanten Wasserkörpern einen nennenswerten Beitrag zur Verkarstung leisten kann, vor allem in niederschlagsarmen Perioden, während derer Strömungen in Karstsystemen auch teilweise zum Erliegen kommen. Die treibende Kraft hinter der dichtegetriebenen Einlösung sind periodisch hohe Konzentrationen von CO₂ in der vadosen Zone.

Die vorliegende Arbeit berichtet über Messkampagnen, deren Ziel es ist, die saisonalen Fluktuationen von CO₂ in Höhlenluft zu erfassen, zu verstehen und mit Wetterdaten zu korrelieren. Vorläufige Ergebnisse der Messungen werden vorgestellt. Die Interpretation dieser Daten ist von Bedeutung, um die möglichen Auswirkungen auf den Vorgang der konvektiven Einlösung in Karstwasser zu verstehen und einordnen zu können. Hierzu werden Erklärungsansätze und konzeptionelle Modelle entwickelt und erste Ergebnisse in dieser Arbeit vorgestellt.

Abstract

The vital role of carbon dioxide (CO₂) for karstification is obvious. The path of the CO₂, which dissolves in the seepage water and is transported with it, is also well understood. A currently much less described process concerns the direct transfer of CO₂ from the air into water bodies in the case of very low flow velocities and the resulting process of convectively enhanced dissolution. The concept of nerochytic speleogenesis was presented by SCHERZER et al. (2017); it assumes that convectively enhanced CO₂ dissolution in (quasi-)stagnant water bodies can contribute significantly to karstification, particularly in periods of low precipitation, during which flows in karst systems also come to a partial standstill. The driving force behind density-driven dissolution is periodically high concentrations of CO₂ in the vadose zone.

This article reports on measurement campaigns aimed at recording and understanding the seasonal fluctuations of CO₂ in cave air and correlating them with weather data. Preliminary results of the measurements are presented. The interpretation of these data is important in order to understand and classify the possible effects on the process of convective dissolution in karst water. To this end, explanatory approaches and conceptual models are developed and initial results are presented in this paper.

Anschrift der Verfasser: LEON KEIM, RUBEN JOAO, HOLGER CLASS, Universität Stuttgart, Pfaffenwaldring 61, 70569 Stuttgart, e-mail: holger.class@iws.uni-stuttgart.de.

1 Einordnung des Forschungsthemas

Kohlendioxid (CO_2) ist der Hauptantrieb der Verkarstung. Die grundlegenden Konzepte der gängigen Verkarstungstheorien beruhen auf der Bewegung des Sickerwassers, welches aus der Bodenzone CO_2 aufnimmt und sich dann über Klüfte und Schichtflächen seinen Weg durch das Kalkgestein sucht, bevor es in der Folge Karströhren ausbildet, die sich schließlich zu großen, wasserdurchflossenen Hohlräumen ausdehnen können. Auf dem Weg in die Tiefe reagiert das kohlensaure Wasser mit dem Gestein und gelangt recht schnell zu einem Gleichgewicht. Die Mischungskorrosion (BÖGLI 1980) sorgt dafür, dass

bei jedem Zusammentreffen von zwei Wasserströmen, die jeder für sich jeweils im Gleichgewicht stehen können, wieder eine kalkaggressive Mischung entsteht, die weiteren Kalk löst, um wieder im Gleichgewicht zu sein. Neuere Arbeiten diskutieren auch einen Weg des CO_2 , der direkt aus der Gasphase in stagnantes Karstwasser führt, wo es durch konvektiv verstärktes Einlösen an der Grenzfläche zwischen vadoser und phreatischer Zone auch zu einem nennenswerten Beitrag an Karstlösungspotential kommen kann, siehe z.B. CLASS et al. (2020, 2021, 2023). Eine schematische Darstellung der in dieser Arbeit untersuchten physikalischen Prozesse zeigt die Abbildung 1.

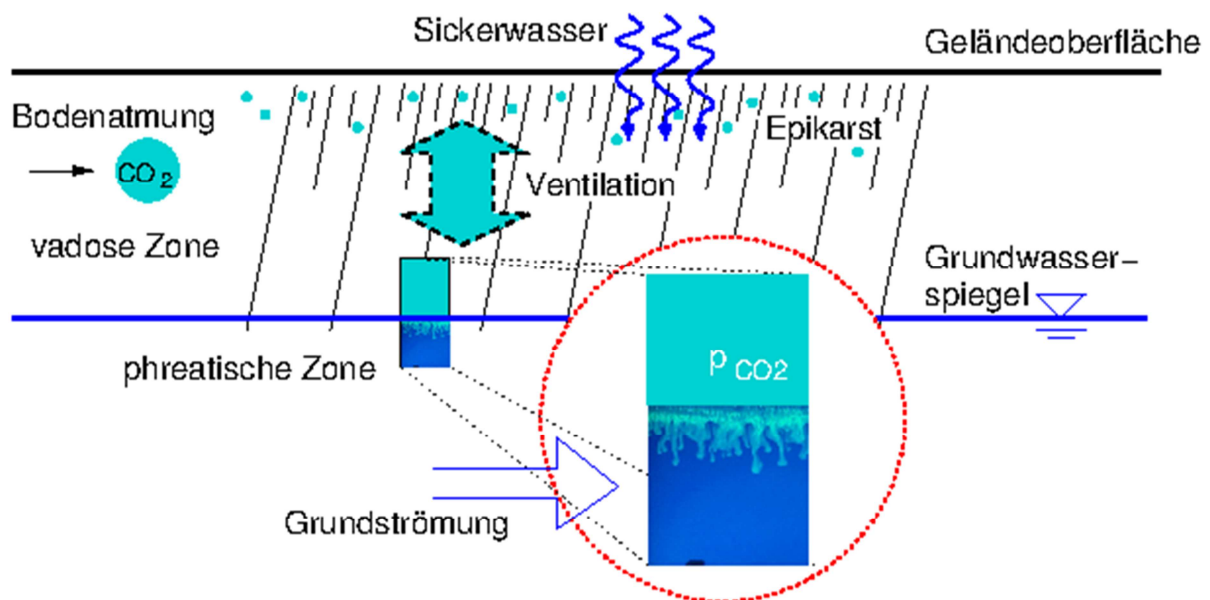


Abb. 1: Schemaskizze, stark vereinfacht, zur Veranschaulichung des Forschungsthemas: Am Karstwasserspiegel verursachen schwankende CO_2 -Partialdrücke in der Luft eine Einlösedynamik von CO_2 . Relevant wird der Prozess, wenn Wasser stagnant oder nur einer sehr geringen Grundströmung ausgesetzt ist. Dichtegetriebene, konvektiv verstärkte Einlösung führt zu einer Fingerbildung, wie in der Abbildung dargestellt.

Abbildung 1 illustriert die konzeptionelle Vorstellung von CO_2 -Migration in der vadosen Zone, die durch Ventilation begünstigt wird und so zu einer Anreicherung von CO_2 an der Grenzfläche zwischen vadoser und phreatischer Zone führt. Das CO_2 , das sich im Wasser einlöst, erhöht darin die Dichte, was zu einer instabilen Schichtung von CO_2 -

reicherem über CO_2 -ärmerem Wasser führt und schnell zu einer Konvektion führt (Fingering), die wiederum die weitere Einlösung bedeutend verstärkt. Hinsichtlich der Antriebskräfte für konvektives Einlösen fehlen bislang zuverlässige Daten zu jahreszeitlichen Dynamiken der CO_2 -Konzentrationen in der Gasphase bzw. Höhlenluft und de-

ren Herkunft. Für konvektives Einlösen ist es von großer Bedeutung, dass CO_2 in der Gasphase nicht aus einem Gleichgewicht mit einer anstehenden Wasserphase kommt, denn sonst wäre kein Konzentrationsgradient als Antrieb für die Einlösung vorhanden. CO_2 benötigt folglich einen eigenen Pfad der unabhängig von der Wasserphase ist, sodass am Wasserspiegel gegenüber dem Gleichgewicht erhöhte Gaskonzentrationen periodisch auftreten können.

Ebenfalls wenige Daten gibt es dazu, wie häufig oder wie großflächig Situationen mit sehr ruhigem/stagnantem Wasserspiegel in Karstsystemen vorkommen. Das Phänomen der Hungerbrunnen auf der Schwäbischen Alb legt nahe, dass episodische Karstquellen, die nur nach großen Niederschlagsereignissen schütten, indirekte Zeugen eines intermittierend funktionierenden Überlaufsystems sind. Flutereignisse und episodisch stagnantes Wasser, welches in Kontakt mit der Luft der vadosen Zone ist, wechseln sich demnach ab.

Dieser Beitrag widmet sich einer langfristig angelegten Messkampagne in der Laichinger Tiefenhöhle. Die Tiefenhöhle ist charakterisiert durch zahlreiche Schächte, wobei die Hohlräume zum Teil sehr nahe an die Geländeoberkante reichen. Zudem sind keine Winde innerhalb des Systems bekannt, die eine signifikante Luftzirkulation verursachen würden. Der Wasserspiegel liegt heute mehrere Zehnermeter unterhalb des tiefsten erreichbaren Punktes; die Höhle ist also nicht mehr mit dem Karstwasserspiegel verbunden. Die Tiefenhöhle ist eine Schauhöhle und von Frühjahr bis Herbst für Besucher geöffnet.

Seit April 2021 werden im Ostschacht der Tiefenhöhle kontinuierlich Daten zur CO_2 -Konzentration in der Höhlenluft gesammelt. Zeitweise war dort eine Wassersäule installiert, in welcher die Konzentrationschwankungen und ihre Auswirkungen auf das Wasser in

verschiedenen Tiefen gemessen werden konnten. Details sind in CLASS et al. (2023) nachzulesen.

Nachfolgend werden das Messkonzept sowie grundlegende konzeptionelle Überlegungen zum Gastransport in der vadosen Zone vorgestellt. Anschließend werden die Messdaten aufbereitet, analysiert und interpretiert.

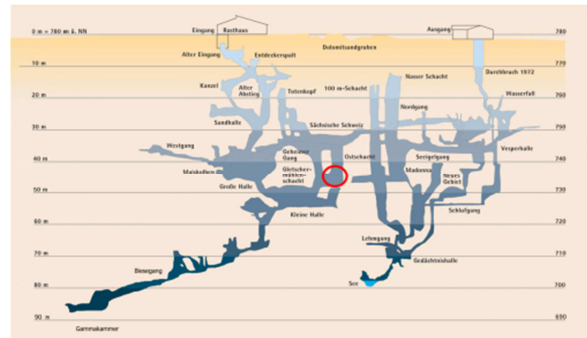


Abb 2: Skizze des Aufbaus der Laichinger Tiefenhöhle. Der rote Kreis markiert den Ort der Messkampagne

2 Methoden

2.1. CO_2 Sensoren für die Höhlenluft

Für die Messung von CO_2 in der Höhlenluft wurden GMP252-Sonden der Firma Vaisala verwendet. Diese ermöglichen Messungen im ppm-Bereich. Diese Sensoren sind weitverbreitet und werden in vielen professionellen Anwendungen eingesetzt. Das Funktionsprinzip dieser nicht-dispersiven Infrarot-Gassensoren (NDIR) basiert auf dem Gesetz von Lambert-Beer, welches die direkte Proportionalität zwischen der Abschwächung des Lichts beim Durchgang durch eine Probe infolge von Absorption und ihrer Konzentration beschreibt.

$$E_{\lambda} = \log \frac{I_0}{I_1} = \epsilon_{\lambda} c_i d \quad (1)$$

CO_2 -Absorptionsbanden finden sich bei den charakteristischen Wellenlängen 15, 4,26, 2,7 und 2,0 μm . Allerdings ist der Absorptionspeak bei 4,26 μm stark von anderen atmosphärischen Gasen

isoliert, sodass dieser am häufigsten für CO₂-Messungen verwendet wird.

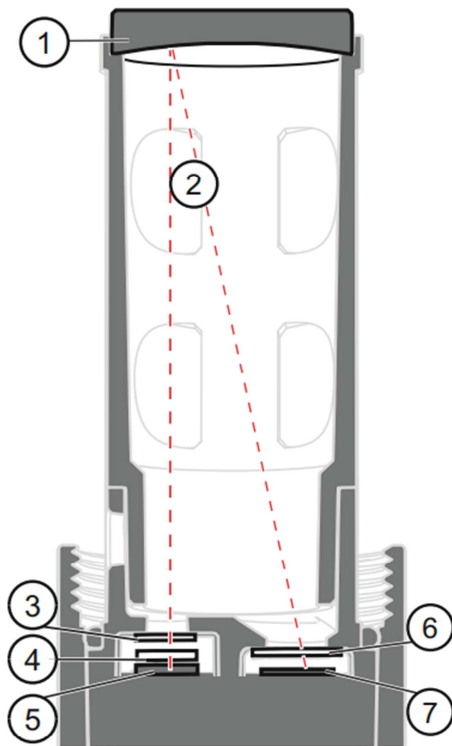


Abb. 3: Aufbau GMP252 Messküvette.

Die Vaisala Sonden verwenden ein Fabry-Perot-Interferometer (FPI) (4), um die charakteristische Wellenlänge λ aus der Lichtquelle (5) durch eine Küvette mit der Länge d mit dem zu messenden Gas der Konzentration c_i zu senden. Ein vergoldeter Spiegel (1) am Ende der Sonde reflektiert das Licht zu einem Thermosäulen-Detektor (7), der die Lichtintensität nach der Absorption (2) misst. Nummer (3) und (6) stellen luftdicht verschlossene Fenster dar. Der Bandbreitenfilter des FPI ändert den Durchlass auf einen Wellenlängenbereich, bei dem keine Absorption stattfindet, um ein Referenzsignal I_0 zu erhalten. Zusammen mit dem λ -abhängigen Absorptionskoeffizienten ϵ_λ wird das Verhältnis zwischen der anfänglichen I_0 und der ausgehenden Infrarotstrahlung I_1 nach der Absorption durch die Gasprobe bestimmt. Daraus wird die Kohlendioxidkonzentration c_{CO_2} berechnet. Die Messung des Referenzsignals erhöht die Stabilität des

Sensors im Laufe der Zeit, die durch Alterung und Signalabschwächung, z. B. durch Verschmutzung, beeinflusst werden kann. Zusätzlich verhindert die Beheizung des Sensorkopfes Kondensationsbildung.

Die interne Temperaturkorrektur wurde deaktiviert, wobei die Temperatur in der Höhle für eine höhere Zuverlässigkeit und zur besseren Übersicht separat mithilfe eines Pt-100 Fühlers minütlich aufgenommen wurde. Auch wurde eine Druckkorrektur für die CO₂ Werte der Sensoren vorgenommen.

Für den Vergleich zu den Umweltdaten wurden frei zugängliche Daten von Stationen des Deutschen Wetterdienstes Merklingen und Stötten verwendet. Diese beinhalten die tägliche Niederschlagsmenge sowie die minimale, maximale und durchschnittliche Tagestemperatur. Zur Kontrolle des eigenen Drucksensors wurden darüber hinaus Druckdaten verwendet.

2.2 Messung von CO₂ im stagnanten Wasser

Für die Messung von CO₂ im Wasser waren einige Modifizierungen an den Sensoren notwendig. Hierfür wurde eine luftdurchlässige, aber wasserundurchlässige Latexmembran zur Abdichtung des gesinterten PTFE-Filters verwendet, der die Messküvette schützt. Der Rest des Sensors wurde bis zur Kabelverbindung mit selbstverschweißendem Klebeband aus Polyisobutylene umwickelt. Die Vaisala Sensoren können nur gasförmiges CO₂(g) messen, welches aus dem Wasser durch die Membran hindurch in die Messküvette diffundieren muss bzw. auch wieder heraus. Die Reaktionszeit der auf diese Weise modifizierten Sensoren auf Veränderungen in der Konzentration liegt in der Größenordnung von einigen Minuten bis zu einer halben Stunde. Es wurden im Vergleich dazu auch kommerziell für den Einsatz unter Wasser erhältliche

Sensoren der Firma AMT (Analysemesstechnik GmbH Rostock) verwendet, welche auf demselben Messprinzip basieren; diese weisen mit etwa zwei Stunden eine deutliche höhere Reaktionszeit auf, während sie aber robuster und weniger stör anfällig im Dauereinsatz sind (und deutlich teurer). Zur Bestimmung der gelösten Konzentration von CO_2 aus der Messung des Sensors wird die Gültigkeit des Henry-Gesetzes vorausgesetzt. Dies besagt, dass die Konzentration eines gelösten Gases c_i in der wässrigen Phase direkt proportional zu seinem Partialdruck in der Gasphase p_i (hier in atm) an der Phasengrenze ist. Damit lässt sich von der gasförmigen auf die wässrige CO_2 Konzentration schließen. Die Henry-Löslichkeitskonstante H_{cp} ist eine Funktion der Temperatur.

$$c_i = H_{cp} p_i \quad (2)$$

Um einen idealisierten Höhlensee oder anderes stagnantes Wasser zu imitieren, wurde eine 6 m hohe Wassersäule aus HDPE Rohren mit einem inneren Durchmesser von 227 mm im Ostschacht der Tiefenhöhle aufgestellt und mit Leitungswasser der Landeswasserversorgung auf 5,85 m Wassertiefe aufgefüllt. Darin wurde jeweils ein abgedichteter Sensor in eine Wassertiefe von 5,6 m und 0,15 m abgesenkt. Oberhalb der Wasseroberfläche konnte die Höhlenluft frei zirkulieren. Die CO_2 Konzentration der Luft wurde kontinuierlich durch einen unmodifizierten Vaisala GMP252 Sensor aufgenommen. Für mehr Details, siehe CLASS et al. (2023).

2.3 Mehrphasentransport in porösen Medien

Insbesondere zur Interpretation der CO_2 -Konzentrationen in der Höhlenluft und der korrespondierenden Transportwege in der vadosen Zone ist ein grundlegendes Verständnis über Mehrphasentransport in porösen Medien notwen-

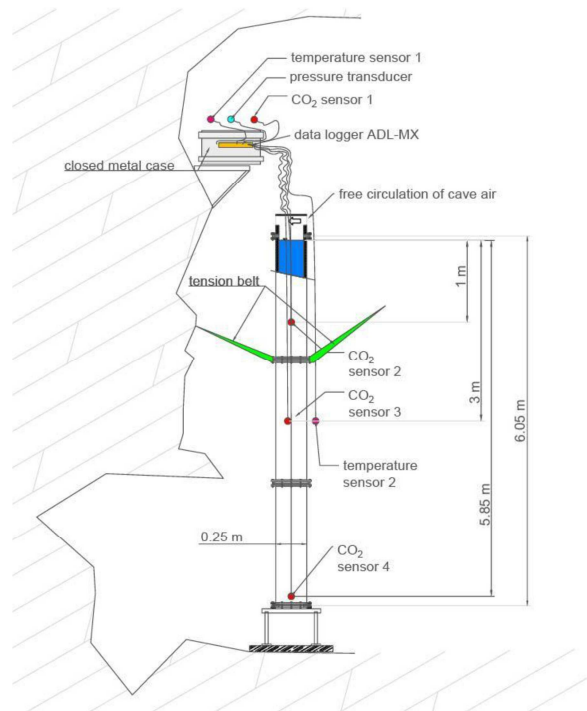


Abb 4: Aufbau der stagnanten Wassersäule.

dig. Generell gilt in vollgesättigten Böden das in der Grundwassermodellierung etablierte Darcy-Gesetz:

$$v_f = -\frac{K}{\mu} (\nabla p + \rho g) \quad (3)$$

Es beschreibt im Wesentlichen, dass die sogenannte Filtergeschwindigkeit proportional zum antreibenden Gradienten aus Druck und Schwerkraft sowie zum Widerstand, ausgedrückt durch die Permeabilität und die Viskosität, ist. Erweitert man das Gesetz für zwei anwesende Phasen, so konkurrieren diese um den Hohlraum im porösen Medium, was effektiv zu einer Reduktion der Permeabilität einer Phase führt.

Dieses Verhalten wird beschrieben durch eine Erweiterung der Darcy-Gleichung für Mehrphasensysteme:

$$v_{f,\alpha} = -\frac{k_{r\alpha}}{\mu_\alpha} K (\nabla p + \rho g) \quad (4)$$

Die sogenannte relative Permeabilität ($k_{r\alpha}$) nimmt Werte zwischen 0 und 1 ein, je nach Volumenanteil (Sättigung) der Fluidphasen im Porenraum. Aus Gleichung (4) folgt, dass kein Gasfluss möglich ist, wenn $k_{r\alpha}$ für die Gasphase

gegen 0 strebt. Sind Boden- oder Gesteinsschichten mit viel Wasser gesättigt, z.B. nach viel Niederschlag, dann wirken diese Schichten für die Gasphase als Barriere, während sie für Wasser weiterhin durchlässig sind.

Eine charakteristische Abhängigkeit der relativen Permeabilität von der Wassersättigung wird in der Abbildung 5 dargestellt:

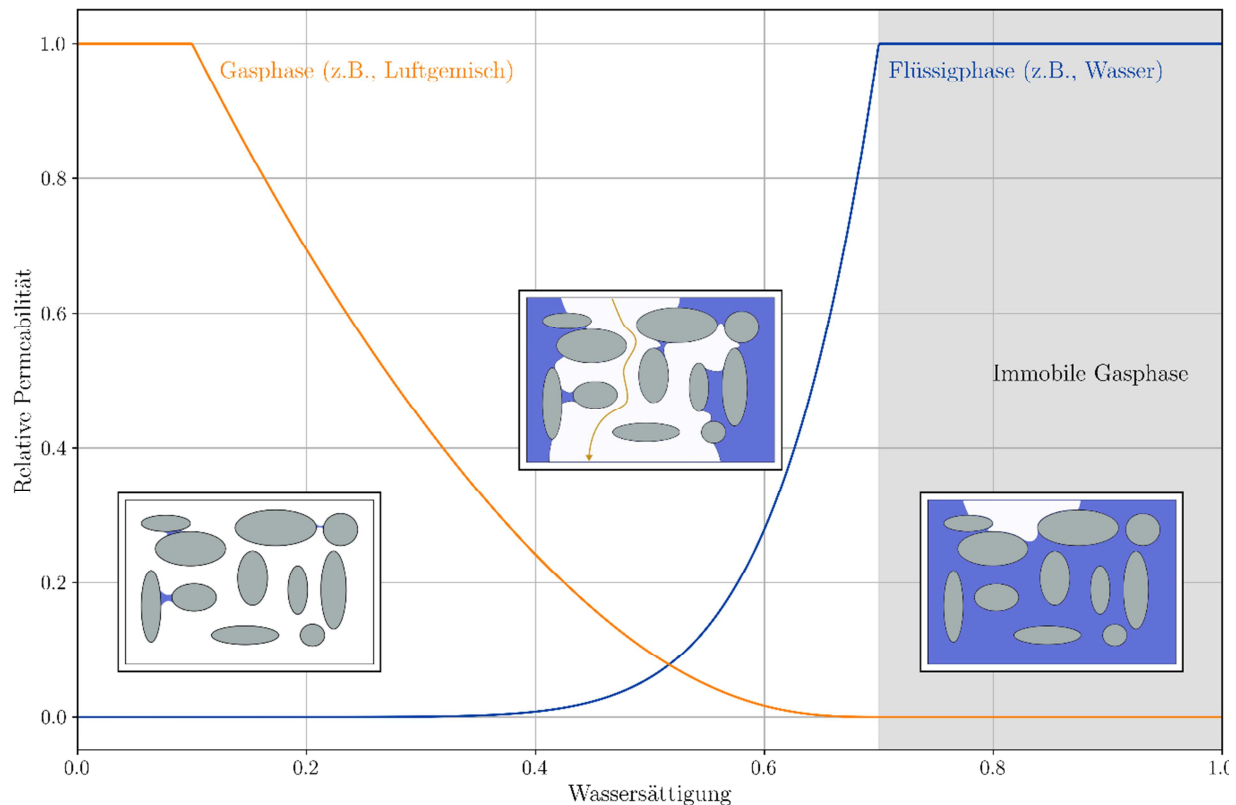


Abb. 5: Charakteristischer Verlauf der relativen Permeabilität in Abhängigkeit der Wassersättigung, z.B. nach BROOKS & COREY (1966). Für eine Wassersättigung größer 0.7 kann sich in diesem Beispiel das Gas im Boden nicht bewegen.

3 Ergebnisse der Messkampagne

3.1 Makroskopische Effekte

Die langfristig angelegte Messkampagne im Ostschacht der Tiefenhöhle begann im Juni 2021 und wird Stand Herbst 2024 weiter fortgeführt. Makroskopisch folgt die CO_2 Konzentration in der Höhlenluft einem periodischen Verlauf. In den Wintermonaten bis zum Frühsommer ist die CO_2 Konzentration im Vergleich zum Sommer/Herbst generell niedriger. In Perioden mit hohem Niederschlag zeigt sich eine Tendenz hin zu einer Konzentration von etwa 15.000 ppm CO_2 . Diese Konzentration

verstehen wir als eine Art Basiswert, die alles Wasser annimmt, welches lange im Karstsystem gespeichert ist und ausreichend Zeit hat, diesen Gleichgewichtswert anzunehmen. Dies hat zur Folge, dass Niederschlagsereignisse im Sommer tendenziell die Konzentration von CO_2 verringern, während sie im Winter dadurch tendenziell erhöht werden. Die maximale Konzentration lag kurzzeitig bei 20.000 ppm im Spätsommer 2021. Im Folgenden wird nun auf zeitlich eher kleinskalige Effekte eingegangen. Für die Übersichtlichkeit wurde die Messreihe in Kalenderjahre unterteilt. Zeiträume von besonderem Interesse sind farblich gekennzeichnet

und referenziert mit a-d für die erleichterte Zuordnung im Text.

3.1.1 Messreihe 2021

a) Ausgehend von etwa 15.000 ppm (Basiswert – wie sich im Lauf der Zeit herausstellte) sank die Konzentration kontinuierlich bis Mitte Juni ab (11.000 ppm). Dieses Frühjahr war durch sehr geringen Niederschlag geprägt.

b) Mit dem ersten signifikanten Niederschlag wurde das Absinken der CO₂ Konzentration beendet und die Konzentration stieg bis auf 15.000 ppm bis Anfang Juli. In den darauffolgenden zwei Monaten (Anfang Juli-Ende August) mit wenig Niederschlag fand ein Anstieg auf bis zu 20.000 ppm statt.

c) Der Anstieg der CO₂ Konzentration wurde durch signifikanten Niederschlag gestoppt.

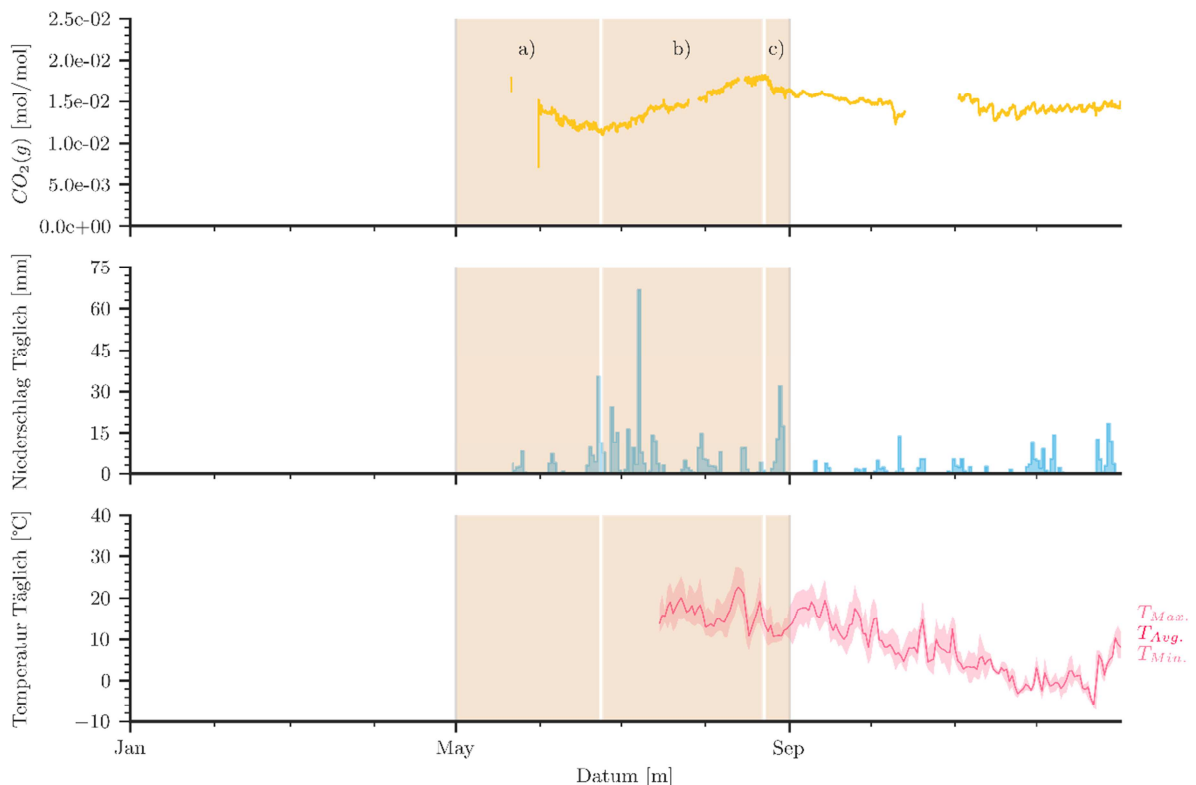


Abb. 6: Messreihe 2021: CO₂-Konzentration in 2 m über dem Boden des Ostschachts, Niederschlag und Außentemperatur aus Daten des DWD.

3.1.2 Messreihe 2022

Eine nahezu trockene und kalte Periode ließ die CO₂ Konzentration in der Höhle von 15.000 ppm auf unter 10.000 ppm absinken.

a) Eine nasse Periode während des Frühjahrs verursachte einen Anstieg der Konzentration von 8.000 auf fast 12.000 ppm im April 2022.

b) Eine weitere trockene Periode mit starker Abkühlung sorgte für den

Abfall der Konzentration auf 6.000 ppm.

c) Im Sommer war die Spitzenkonzentration nicht annähernd so hoch wie im vorherigen Sommer. Der Niederschlag war über den ganzen Sommer hinweg gering.

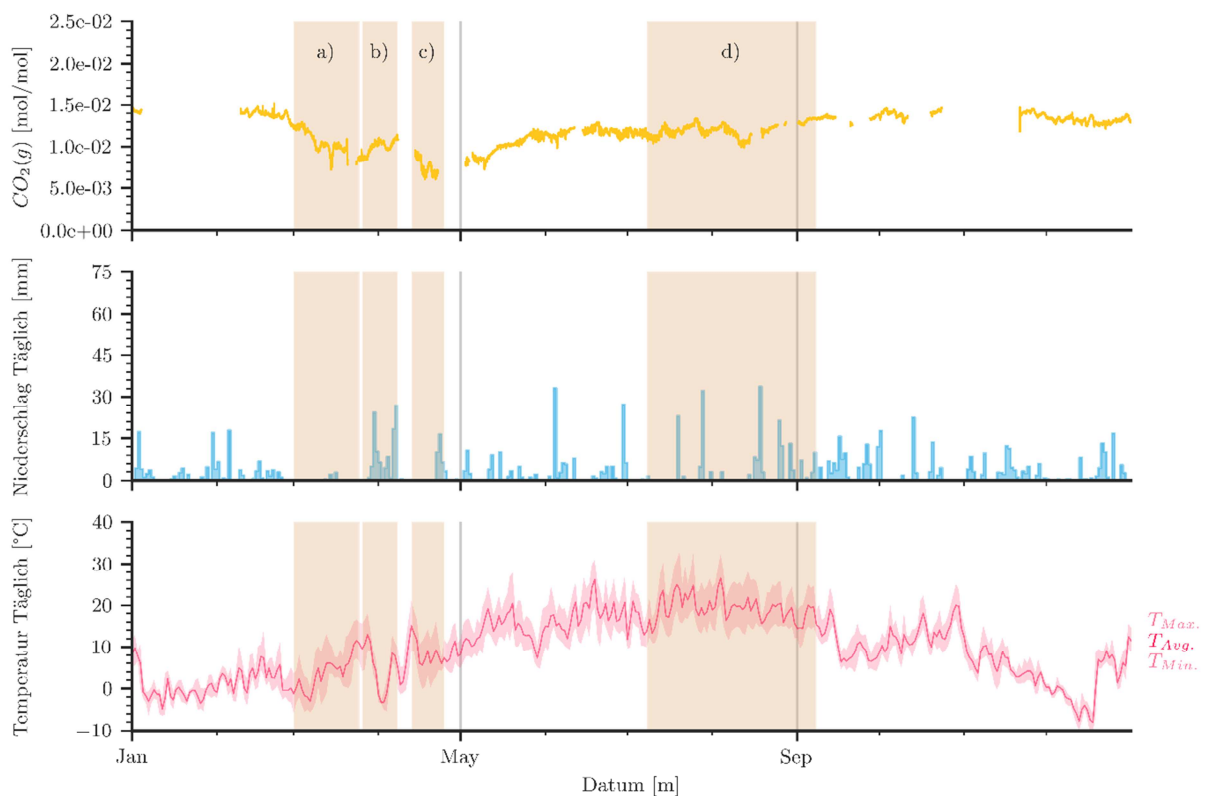


Abb. 7: Messreihe 2022: CO₂-Konzentration in 2 m über dem Boden des Ostschachts, Niederschlag und Außentemperatur aus Daten des DWD.

3.1.3 Messreihe 2023

- Ausgehend von 15.000 ppm fiel die Konzentration in einer trockenen und kalten Phase auf bis zu 11.000 ppm.
- Ein niederschlagsarmer Frühsommer (Mai-Juni) verzögerte den Anstieg der Konzentration im Juni 2023.
- Während des niederschlagsreichen Herbstes stellt sich wieder eine Konzentration von 15.000 ppm ein.
- Ein signifikanter Wintereinbruch mit Niederschlag als Schnee führt in der Folge zu einem kleinen aber abrupten Abfall der CO₂ Konzentration.

Eine markante Spitze der Konzentration war am 5. März 2023 zu beobachten, für mehr Details dazu siehe Abschnitt 4.1.5.

3.1.4 Messreihe 2024

Die Messreihe 2024 zeichnet durch die vielen Lücken in den Messdaten ein

schwer interpretierbares Bild. Der Datenlogger zeigt zunehmend Ausfälle und muss künftig durch eine zuverlässigere Aufzeichnung ersetzt werden.

- Winter/Frühjahr waren nass und es wurden keine sehr niedrigen CO₂ Konzentrationen gemessen.
- Im Spätsommer konnten wieder recht hohe Konzentrationen von 18.000 ppm gemessen werden. In der Zeit mit sehr viel Niederschlag (Mai-Juni) gibt es durch Ausfall des Loggers leider keinen korrespondierenden Verlauf von CO₂ Konzentrationen.
- Ein Kälteeinbruch mit wenig Niederschlag lässt die Konzentration rapide von 18.000 ppm auf 10.000 ppm abfallen.
- Einsetzender Regen bringt die Konzentration zurück auf 15.000 ppm.

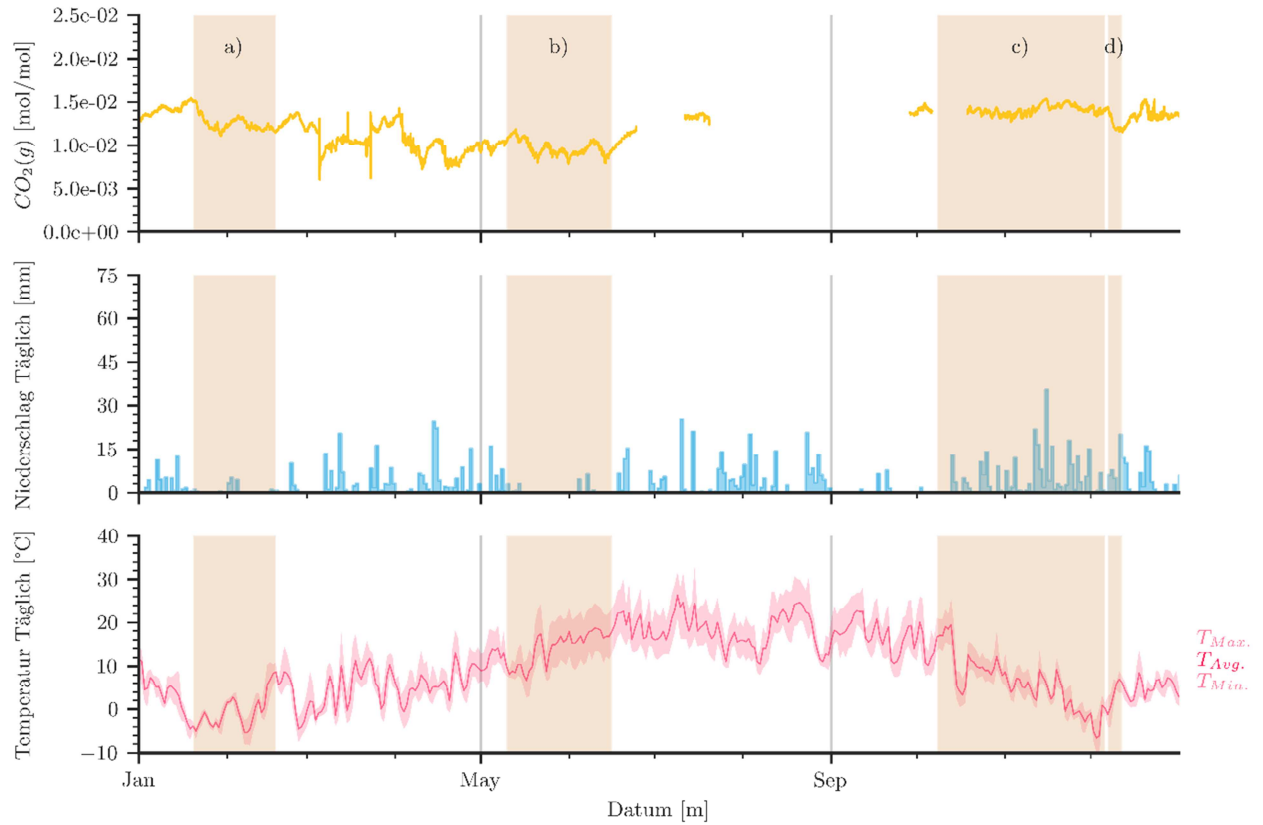


Abb. 8: Messreihe 2023: CO_2 -Konzentration in 2 m über dem Boden des Ostschachts, Niederschlag und Außentemperatur aus Daten des DWD.

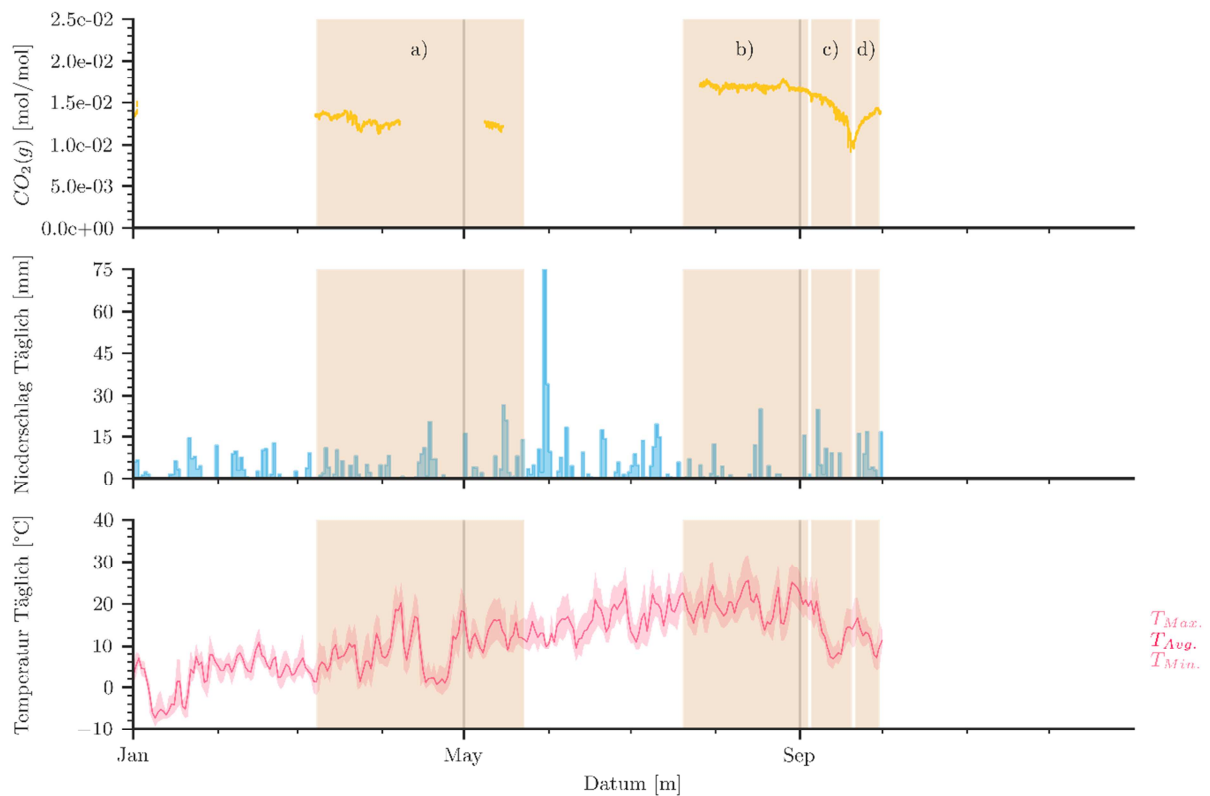


Abb. 9: Messreihe 2024: CO_2 -Konzentration in 2 m über dem Boden des Ostschachts, Niederschlag und Außentemperatur aus Daten des DWD.

3.1.5 Besondere Ereignisse und Artefakte

Die oben beschriebenen und im nächsten Abschnitt diskutierten Trends sind übergeordnet und der Komplexität des Karstsystems im Zusammenspiel mit atmosphärischen Einflüssen zuzuschreiben. Gleichwohl konnten auch Artefakte beobachtet werden, deren Ursache menschliche Aktivitäten sind.

Eine immer wiederkehrende Frage ist, ob der Einfluss der Besucher in der

Tiefenhöhle, zwischen April und November eine Schauhöhle ist, die CO_2 -Konzentrationen verfälscht. Der Plot der CO_2 Konzentration über einen kurzen Zeitraum im August 2024 zeigt eindeutig, dass Tagesschwankungen auftreten, die offensichtlich mit dem Besucherverkehr zusammenhängen. Auf der Skala des Jahresverlaufs spielen diese kleinen Schwankungen jedoch eine vernachlässigbare Rolle.

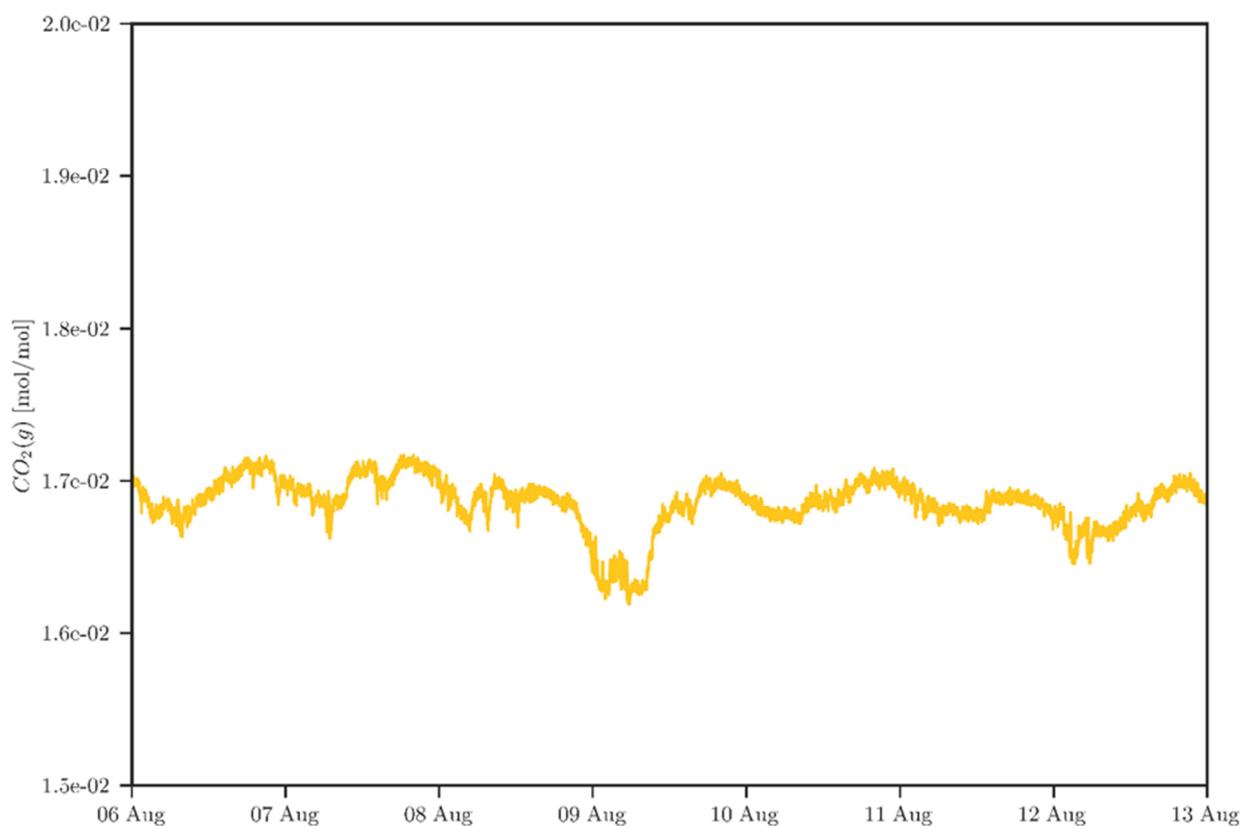


Abb. 10: Tagesschwankungen der CO_2 -Konzentration, ausgelöst durch Besucherverkehr, beobachtet hier in einem kurzen Zeitraum der Sommerferien 2024. Diese Schwankungen beeinflussen die übergeordneten Trends nicht.

Ein interessantes Ereignis zeigt auch der Detailplot rund um den 5. März 2023. An diesem Tag fand eine Großübung der Höhlenrettung Baden-Württemberg statt, wobei eine aktive Belüftung bis hinunter auf Höhe des Messstandortes im benachbarten 100-m-Schacht eingebaut wurde. Die Auswir-

kung ist sehr deutlich erkennbar, wobei auch interessant ist, dass für solch ein pulsartiges Ereignis eine Reaktionszeit des Systems in der Größenordnung von nur sehr wenigen Tagen beobachtet wurde. Dies könnte für weitergehende Studien noch einen wertvollen Datensatz darstellen.

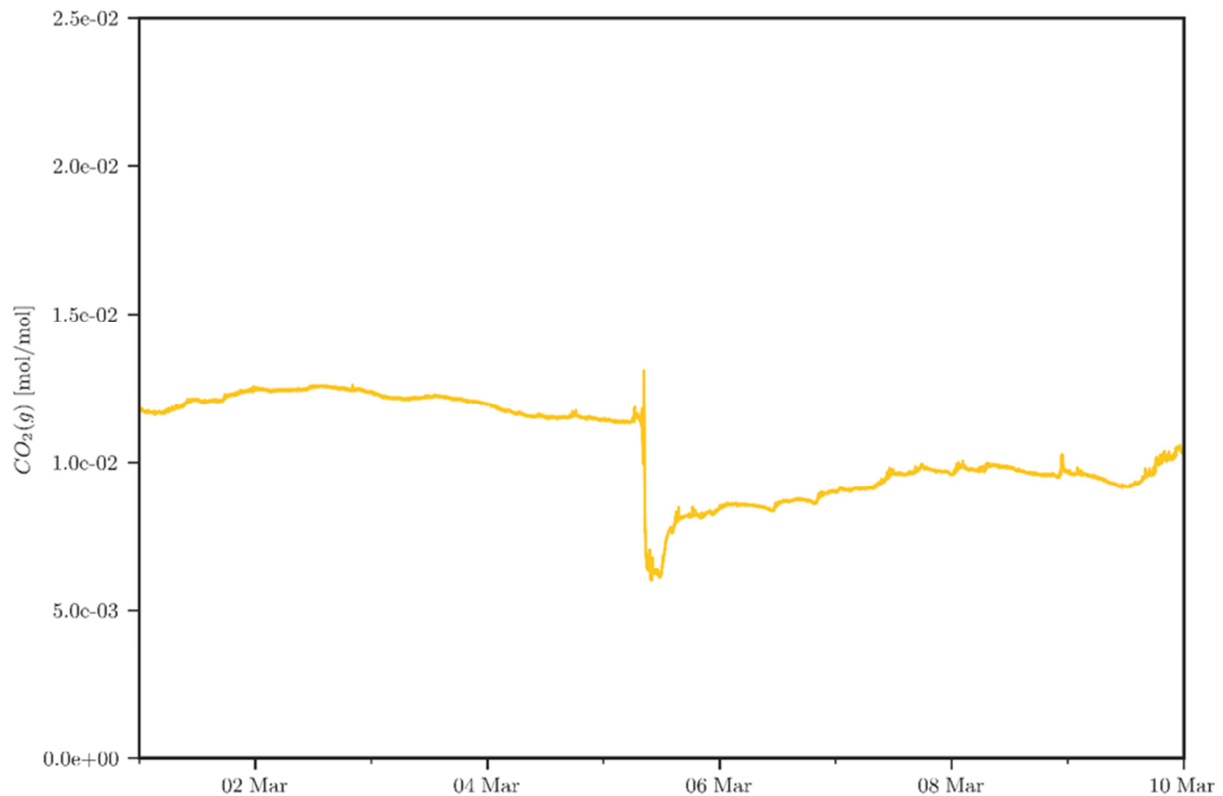


Abb. 11: Detailplot der CO₂ Konzentration. Am 5. März fand eine Übung der Höhlenrettung Baden-Württemberg statt mit Einbau einer Belüftung statt.

3.2 Interpretationsansätze

Tendenzen der Konzentrationsverläufe sind mithilfe eines konzeptionellen Ansatzes für die Gasphasenmobilität von CO₂ in geklüftetem Gestein gut erklärbar (COVINGTON 2016). Hierbei geht man davon aus, dass die Klüfte und Wegsamkeiten des Höhlensystems im Karstgestein bis kurz unter die Oberfläche führen und nur eine geringe Überdeckung existiert. Die Wegsamkeiten sind groß genug um einen Gasaustausch auch bei geringen Antriebskräften (Dichteunterschieden) zu ermöglichen. Oberhalb des geklüfteten Gesteins liegt die oberste Bodenschicht, die abhängig von ihrer Sättigung als Barriere oder permeable Schicht anzusehen ist. Für eine Erklärung, siehe Abschnitt 3.3 zu Mehrphasenprozessen in porösen Medien.

Um nun einen Gasaustausch zwischen Höhle bzw. vadosen Zone und Atmosphäre zu haben, wird eine Antriebskraft

benötigt. Dafür kommen in unserem Fall zwei Möglichkeiten in Frage:

- Gas wird schwerer je kälter es ist.
- Gas wird schwerer je mehr CO₂ darin enthalten ist.

Damit stellen sich immer zwei Fragen.

- Ist der Boden durchlässig für Gas-transport?
- In welche Richtung zeigt der Dichtegradient bzw. Druckgradient und damit die Antriebskraft?

Exemplarisch könnte folgende Konstellation betrachtet werden. Im Winter ist die Atmosphärenluft in Laichingen kalt. Die Temperatur der Höhlenluft beträgt durchgehend ca. 8°C. Die Luft ist außen schwerer als innen, der Dichtegradient zeigt nun nach innen. Trocknet währenddessen die oberste Bodenschicht aus, kann ein Austausch zwischen Atmosphärenluft und der Höhlenluft stattfinden. Dies kann beispielsweise den rapiden Abfall der CO₂-Höhlenkonzentration erklären.

tration im Februar-April 2022 erklären. Des Weiteren bringen wir folgende oben beschriebene Phasen damit in Verbindung: 2021: a), b) zweiter Teil; 2022 a), c); 2023: a), b), d); 2024: c).

Im Sommer hingegen ist die Situation komplexer. Die Atmosphärenluft ist tagsüber wärmer als die Höhlenluft, in der Nacht kann sie aber auch kälter sein. Sehr viele Autoren beschreiben den Einfluss von Temperatur und Bodenfeuchte auf die Produktion von CO₂ im Boden und dessen Speicherung im Wasser bzw. im Porenraum (HOUILLON 2020; PEYRAUBE 2015; BONACCI 1987; DREYBRODT 1988; FORD & WILLIAMS 2007; KLIMCHOUK et al. 2000; STEVANOVIC 2015; WHITE 2018). Trocknet ein warmer und feuchter Boden aus, hat die Gasphase zunächst eine sehr hohe CO₂ Konzentration. Abhängig von den Außentemperaturen kann nun auch wieder ein Gasaustausch entstehen, der mutmaßlich für die CO₂ Spitzenwerte in den Spätsommern verantwortlich ist.

Als zweiter wichtiger Transportprozess muss der sogenannte Piston-Effekt (HESS et al., 1988; SELG & SCHWARZ 2009) genannt werden. Dieser ereignet sich nach signifikanten Niederschlagsereignissen. Wie in einem vollgesaugten Schwamm drückt frisches Wasser (aus der Neubildung) altes Wasser, welches schon gelöstes CO₂ enthält, durch die speichernden Gesteinsschichten und es tropft in die Höhle. Es bildet sich ein Gleichgewicht zwischen dem perkolierenden Wasser und der Höhlenluft. Dies sorgt dafür, dass die CO₂ Konzentration der Höhlenluft sich tendenziell der Basiskonzentration im Wasser annähert. Da der Boden ein großes Speichervermögen hat, geht man davon aus, dass dies dazu führt, dass eine durchschnittliche CO₂ Konzentration damit in die Höhle getragen wird. Nach unserer Messung schätzen wir diese Basiskonzentration auf ca. 15.000 ppm. Der Piston-Effekt erklärt damit sehr gut, dass in Zeiten von viel Niederschlag, die Hö-

hlenluft Richtung 15.000 ppm tendiert; so zum Beispiel im gesamten Herbst 2023. Des Weiteren bringen wir folgende oben beschriebene Phasen damit in Verbindung: 2021: b) erster Teil c); 2022 b); 2023: c); 2024: a), b), d).

3.3 CO₂ Konzentration in einer stagnanten Wassersäule

Die Ergebnisse der Messreihe in der Wassersäule im Ostschacht der Tiefenhöhle zwischen Mai 2021 und September 2022 sind bereits ausführlich in CLASS et al. (2023) dokumentiert und werden daher nachfolgend nur kurz rekapituliert.

Nachdem das Verhalten der CO₂ Konzentration in der Gasphase in den Grundzügen plausibel zu erklären ist, stellt sich die Frage, wie sich diese saisonalen Schwankungen der Konzentrationen der Höhlenluft auf (quasi-)stagnantes Karstwasser auswirken. Die Verläufe der entsprechenden Konzentrationsverläufe von gelöstem CO₂ in verschiedenen Wassertiefen der ca. 6 m gefüllten künstlichen Wassersäule sind in der Abbildung 12 dargestellt.

Im Wesentlichen lässt sich beobachten, dass in geringen Wassertiefen die Konzentrationsschwankungen in der Höhlenluft, wenngleich gedämpft, ebenfalls in der gelösten Konzentration messbar sind, während in größeren Wassertiefen das einmal abgesunkene gelöste CO₂ effektiv gefangen ist. Die Verläufe zeigen, dass in einer Wassertiefe von 1 m die aquatische CO₂ Konzentration der Konzentration in der Höhlenatmosphäre nahezu folgt. Dies gilt insbesondere für steigende und abgeschwächt auch für abfallende Konzentrationen. Durch dichtgetriebenes Einlösen (gelöstes CO₂ im Wasser erhöht dessen Dichte) sinken bei gegebenem Antrieb, d.h. bei hohen luftseitigen CO₂ Konzentrationen, vergleichsweise schnell und effektiv signifikante Mengen von CO₂ in der Wassersäule nach unten. Dies erklärt den

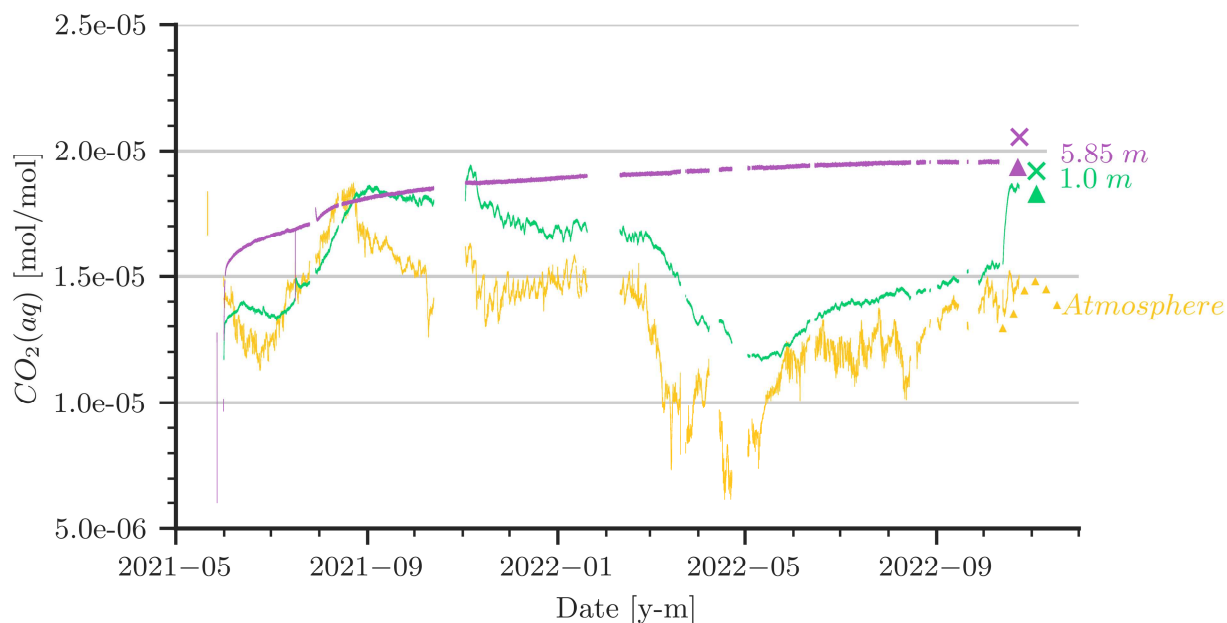


Abb. 12: Konzentrationsverläufe von gelöstem CO_2 in Wasser für verschiedene Wassertiefen. Kontrollmessungen mit einem kommerziellen CO_2 Sensor sind mit Dreiecken gekennzeichnet. Auszüge aus Wasserproben sind mit einem x gekennzeichnet.

schnellen Anstieg im Wasser, wenn außen die Luftkonzentration steigt. Durch Vergleich mit numerischen Simulationen konnten maximale Eintragsraten bei optimalen Bedingungen (relativ frisches Wasser und 2% CO_2 in der Luft) in Größenordnung von mehreren 10 g CO_2 pro m^2 Wasseroberfläche und Monat abgeschätzt werden.

Das Absinken der gelösten CO_2 Konzentration in 1 m Tiefe bei geringen Luftkonzentration z.B. im Winter ist hingegen weniger leicht nachzuvollziehen. Eine ideal stagnante Wassersäule würde keine Durchmischung zeigen, denn der Dichtegradient würde tendenziell eine stabile Schichtung erzeugen und Diffusion allein wäre zu langsam, um CO_2 -reiches Wasser an die Oberfläche zu bringen, wo es dann ausgasen kann. Die zumindest vorläufige Schlussfolgerung ist, dass kleinste Störungen, durch minimale Temperaturunterschiede, durch kleine Erschütterungen, offensichtlich ausreichen, um in bis zu 1 m Wassertiefe eine leichte Konvektion zu erzeugen, die zum Ausgasen von CO_2 führen kann.

In größerer Tiefe sieht der Konzentrationsverlauf dagegen markant anders aus. Das Wasser in 5,85 m Tiefe folgt allmählich einem Anstieg der Konzentration, bis es die Spitzenkonzentration erreicht. Große Wassertiefen in Abwesenheit signifikanter Durchmischungen sind damit eine sehr effiziente permanente Falle für CO_2 .

Die CO_2 -Messungen mit den GMP252 von Vaisala erwiesen sich, auch im Vergleich zu Wasseranalysen an Proben im Labor, als robust, sodass die Messfehler als sehr gering zu bewerten sind.

4 Zusammenfassung und Ausblick

Zur Quantifizierung der saisonalen Schwankungen der CO_2 -Konzentration in der Laichinger Tiefenhöhle (und tendenziell in vergleichbaren Systemen) können folgende Schlussfolgerungen gezogen werden:

1. Der Verlauf der CO_2 Konzentration in der vadosen Zone eines Karstsystems kann in Perioden von trockenen Böden durch eine dann erhöhte Gasphasen-

mobilität beschrieben werden. Dabei spielen gaspermeable Klüfte, die bis zur obersten Bodenschicht reichen, eine zentrale Rolle. Die oberste Bodenschicht, die je nach Wassersättigung, eine unterschiedlich hohe Durchlässigkeit oder keine Durchlässigkeit aufweisen kann, fungiert dabei als potentielle Barriere. Die Sättigung ist dabei eine Funktion von Niederschlag, Wind, Temperatur und Sonneneinstrahlung. Bei hoher Bodenfeuchte kann folglich trotz Antriebskräften kein Austausch in der Gasphase stattfinden.

2. Potentielle Antriebskräfte für Gas-transport sind Dichteunterschiede der Gasphase zwischen der Höhle und der Atmosphäre. Dies kann durch unterschiedliche CO_2 Konzentrationen sowie durch unterschiedliche Temperaturen entstehen. Im Winter ist temperaturbedingt die Antriebskraft immer nach innen (in die Höhle) ausgerichtet. Ist in trockenen Perioden ein Gasaustausch möglich, verringert sich die CO_2 Konzentration in der Höhle durch den Einfluss von Atmosphärenluft. Im Sommer ist die Situation komplexer. An warmen Tagen zeigt der Dichtegradient durch die Temperatur nach außen, allerdings gibt es gleichzeitig sehr hohe CO_2 -Konzentrationen in der Bodenschicht (Dichtegradient nach innen). Eine klare Antriebsrichtung ist somit nicht vorhanden und kann auch tageszeitabhängig sein.

3. Ein weiterer Erklärungsansatz betrachtet Sickerwasser und damit Perioden, die durch signifikanten Niederschlag geprägt sind. Das Sickerwasser, das durch die vadose Zone perkoliert, verdrängt „altes“ Wasser in die Höhle, welches bereits eine durchschnittliche aquatische CO_2 Konzentration (Basiswert) aufweist. Auf dem Weg nach unten führt es zu einer Gleichgewichtsbildung zwischen der Gasphase in der Höhle und dem perkolierenden Wasser. Somit tendiert die Höhlenkonzentration in diesen Phasen zu einer CO_2 Konzentration von ca. 15.000 ppm.

4. Experimente zeigten, dass gelöstes CO_2 in der Wasserphase aus 1 m Wassertiefe auch wieder zurück in die Gasphase gelangen kann. CO_2 gelöst in Tiefen von 5,85 m ist dort permanent gespeichert und kann ohne erzwungene Umwälzung nicht zurück in die Gasphase gelangen.

5. Interessant für die Relevanz der nerocytischen Speläogenese: Für stagnante Wasserkörper können die schwankenden CO_2 Konzentrationen in der vadosen Zone dazu führen, dass sich maximal bis zu 10 g CO_2 pro Quadratmeter (Gas/Wassergrenzschicht) und Monat einlösen können.

Die diskutierten Mechanismen und Antriebskräfte können Tendenzen der gemessenen Verläufe plausibel erklären, allerdings gibt es noch offene Fragen, vor allem hinsichtlich der Übertragbarkeit auf andere Karstsysteme.

Wie repräsentativ ist die Annahme, dass Hohlräume bis nahe an die Geländeoberfläche reichen, wie in der Laichinger Schachthöhle? Je mächtiger die oberste Bodenschicht wird, desto weniger relevant ist der Erklärungsansatz mit Hilfe der Gasphasenmobilität. Dieses Modell ist somit nur für Karstgebiete mit dünner Überdeckung anwendbar. Auch sind klimatische Bedingungen für Karst nicht immer dieselben, zum Beispiel ist in den Tropen die Höhlenluft kälter als die Außenluft und somit gibt es die beschriebenen Effekte im Winter nicht.

Der Niederschlag als Proxy für die Bodenfeuchte dient nur als erster Schritt und berücksichtigt bislang noch nicht den Einfluss der Vegetation und der Landwirtschaft. Die Modellierung der tatsächlichen Verhältnisse ist allerdings sehr komplex und ein für sich eigenes Fachgebiet, ebenso wie die Quantifizierung der Produktion von CO_2 in der obersten Bodenschicht.

Was den Übergang von CO_2 in quasi-stagnantes Wasser angeht, gilt es weiterhin die Häufigkeit dafür förderlicher

Konstellationen zu bewerten, nämlich intermittierend frisches Wasser an der epiphreatischen Grenzfläche bei gleichzeitig erhöhten CO₂ Konzentrationen in der vadosen Zone. Hungerbrunnen sind ein Indiz für periodisch stagnantes Wasser; Flutungseignisse sind ein Indiz für periodisch auftretende Frischwasserzufuhr. Die Gaskonzentrationsmessungen aus dieser Studie sind ein Indiz für periodisch hohe Konzentrationen in der

Luft. Eine belastbare Quantifizierung des Zusammenwirkens dieser Faktoren in realen Systemen steht noch aus.

Dank

Die Autoren bedanken sich bei HARALD SCHERZER vom Höhlen- und Heimatverein Laichingen für seine Ideen und Diskussionsbeiträge. Die Inspiration zu dem Forschungsthema stammt von ihm.

Schriftenverzeichnis

- BONACCI, O. (1987): Karst Hydrology. With Special Reference to the Dinaric Karst. – Physical Environment; Berlin/Heidelberg (Springer).
- BÖGLI, A. (1980): Karst Hydrology and Physical Speleology. –Berlin Heidelberg (Springer).
- BROOKS, R.H. & COREY, A.T. (1966): Properties of porous media affecting fluid flow. – J. Irr. Drain. Div., **92**: 61–88.
- CHANG, Y., HARTMANN, A., LIU, L., JIANG, G. & WU, J. (2021): Identifying more realistic model structures by electrical conductivity observations of the karst spring. – Water Resources Research, **57**, e2020WR028587.
- COVINGTON, M. (2016): The importance of advection for CO₂ dynamics in the karst critical zone: An approach from dimensional analysis. 10.1130/2015.2516(09).
- CLASS, H., BÜRKLE, P., SAUERBORN, T., TRÖTSCHLER, O., STRAUCH, B., & ZIMMER, M. (2021): On the role of density-driven dissolution of CO₂ in phreatic karst systems. – Water Resources Research, **57**:12, e2021WR030912.
- CLASS, H., KEIM, L., SCHIRMER, L. et al. (2023): Seasonal dynamics of gaseous CO₂ concentrations in a karst cave correspond with aqueous concentrations in a stagnant water column. – Geosciences, **13**: 2, 51.
- CLASS, H., SCHERZER, H., BÜRKLE, P. (2020): Nerochytische Speläogenese – Versenkung von CO₂ aus der vadosen Zone in das Karstwasser der phreatischen Zone: Stand der Forschung 2020. – Laichinger Höhlenfreund, **54**; Laichingen.
- DREYBRODT, W. (1988): Processes in Karst Systems-Physics, Chemistry, and Geology. – Physical Environment; Berlin/Heidelberg (Springer).
- Ford, D. & Ewers, R. (1978): The development of limestone caves in the dimensions of length and depth. – Int. J. Speleol., **10**, 213–244.
- FORD, D. & WILLIAMS, P. (2007): Karst Hydrogeology and Geomorphology – Hoboken, NJ, USA (Wiley).
- GABROVSEK, F. & DREYBRODT, W. (2000): Role of mixing corrosion in calcite-aggressive H₂O-CO₂-CaCO₃ solutions in the early evolution of karst aquifers in limestone. – Water Resour. Res., **36**: 1179–1188.
- HESS, J. W. & WHITE, W. B. (1988). Storm response of the karstic carbonate aquifer of southcentral Kentucky. – Journal of Hydrology, **99**(3), 235–252.

- HOUILLON, N., LASTENNET, R., DENIS, A., & MALAURENT, P. (2020): The CO₂-dynamics in the continuum atmosphere-soil-epikarst and its impact on the karstification potential of water: A case study of the Lascaux cave site (Montignac, France). – In C. BERTRAND, S., DENIMAL, M. STEINMANN, & RENARD, P (Eds.), Eurokarst 2018, Besancon - Advances in the Hydrogeology of Karst and Carbonate Reservoirs, p. 93–99; Springer Nature Switzerland.
- KAUFMANN, G., GABROVSEK, F. & ROMANOV, D. (2014): Deep conduit flow in karst aquifers revisited. – *Water Resour. Res.*, **50**: 4821–4836.
- KLIMCHOUK, A., FORD, D., PALMER, A. & DREYBRODT, W. (2000, Eds.) *Speleogenesis-Evolution of Karst Aquifers*. – National Speleological Society: Huntsville, AL, USA.
- MANGIN, A. (1975): *Contribution à l'étude Hydrodynamique Des Aquifères Karstiques*. – Ph.D. Thesis, Sciences de la Terre, Université de Dijon, Dijon, France.
- PEYRAUBE, N., LASTENNET, R., DENIS, A., MALAURENT, P. & VILLANUEVA, J. (2015): Interpreting CO₂-SIc relationship to estimate CO₂ baseline in limestone aquifers. – *Environmental Earth Sciences*, **1**:19–26.
- SCHERZER, H., CLASS, H., WEISHAUPT, K. & TRÖTSCHLER, O. (2017): Konvektiver Vertikaltransport von gelöstem CO₂ – ein Antrieb für Verkarstung in der phreatischen Zone im Bedeckten Karst. – *Laichinger Höhlenfreund*, **52**: 29-35; Laichingen.
- SELG, M. & SCHWARZ, K. (2009). *Am Puls der schönen Lau zur Hydrogeologie des Blautopf Einzugsgebietes*. – *Laichinger Höhlenfreund*; **44**; Laichingen.
- STEVANOVIC, Z. (2015): *Karst Aquifers-Characterization and Engineering*. – Cham, Heidelberg, New York, Dordrecht, London (Springer).
- WHITE, W. (2018): *Caves and Karst of the Greenbrier Valley in West Virginia*. – *Caves and Karst Systems of the World*. Cham (Springer).
- GMP252 User Guide, July 2023. Rev. E. Zugriff am 18.09.2024 14:00