PROJEKT SUBI: SICHERHEIT VON UNTERGRUNDSPEICHERN BEI ZYKLISCHER BELASTUNG: FUNKTIONALITÄT UND INTEGRITÄT VON SPEICHERN UND BOHRUNGEN BMBF FÖRDERKENNZEICHEN 03G0869 Teil II: Hauptbericht (Eingehende Darstellung)

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium für Bildung und Forschung



Kurzfassung

Die Energiewende und die mit der Bereitstellung erneuerbarer Energien einhergehenden Fluktuationen des Energieangebots erfordern eine Auslegung der Untertage-Gasspeicher (UGS) für eine höhere Frequenz und z.T. auch Amplitude von Speicheroperationen. Der Einfluss dieser zyklischen Belastungen auf die geologischen und technischen Komponenten und damit auf die Funktionalität und Sicherheit von UGS stand deshalb im Fokus des Vorhabens. Zur langfristigen Sicherung der Schutzgüter wurden die zugrundeliegenden Prozesse und Mechanismen skalenübergreifend sowohl qualitativ als auch quantitativ untersucht. Im Mittelpunkt stand eine holistische Betrachtung betriebsbedingter Eigenschaftsänderungen von Speicher und Deckgebirge sowie deren Anbindung an technische Einrichtungen (z.B. Zementation von Bohrungen) sowohl von Poren- als auch von Kavernenspeichern. Eng verzahnte experimentelle und numerische Untersuchungen bilden die Basis für Modellvorhersagen, die mit Feldbeobachtungen validiert wurden.

Ziel des Vorhabens war es, die komplexen geomechanischen Vorgänge, welche einen Einfluss auf die Zuverlässigkeit von Untertagespeichern haben, skalenübergreifend und interdisziplinär zu untersuchen. Dabei stand der Einfluss zyklischer Beanspruchungen von technischer Installation und Gasspeicher im regionalen Spannungsfeld im Fokus.

Folgende Hypothese wurde getestet: Eine erhöhte Frequenz und Amplitude im Speicherbetrieb (z.B. als Folge der Energiewende) hat einen Einfluss auf die Integrität von Untertage-Gasspeichern.

Zusammenfassende Ergebnisse: Durch den skalenübergreifenden interdisziplinären Ansatz wurden Lösungen für einen sichereren und nachhaltigeren Betrieb der Speicher auch bei höherzyklischer Belastung erarbeitet und getestet. Als wesentliches Ergebnis kann festgehalten werden, dass sowohl Poren- als auch Kavernenspeicher für einen höherfrequenten Betrieb qualifiziert und ertüchtigt werden können. Einzuhaltende Randbedingungen und Nachweiskonzepte wurden erarbeitet, um die Sicherheit der Speicher weiter zu steigern und die Speicherfunktionalität zu erhalten.

Dabei kann sowohl Salz als auch Tonstein als sicheres Deckgebirge bei höher-frequenten Belastungen genutzt werden, wenn die frequenzabhängigen geomechanischen Eigenschaften und gebirgsmechanischen Randbedingungen hinreichend berücksichtigt werden. Dazu sind geeignete, komplexe Stoffgesetze zu nutzen, das anisotrope Spannungsfeld zu beachten und entsprechend hochaufgelöste numerische Modelle einzusetzen. Entsprechende Modelle und "Workflows" sind im Bericht dargestellt.

Satellitengestützte Verfahren können zur Überwachung von Poren- und Kavernenspeichern genutzt werden. Über geeignete Modelle können aus der beobachteten Deformation die Füllstände abgeleitet werden.

Als kritischstes Element der Speicher werden bei hochzyklischen Belastungen die Bohrungen identifiziert, solange die gebirgsmechanischen Randbedingungen z.B. für das Deckgebirge eingehalten werden. In Experimenten und Modellen wurde gezeigt, wie sich chemische Alterationen und zyklische Belastungen auf die Dichtigkeit auswirken. Es wird vorgeschlagen, die Dichtigkeit zementierter Casings zu erhöhen, indem die Oberflächen der Casings mittels Sandstrahlen aufgeraut und von Korrossionsund Zunderschichten befreit werden. Darüber hinaus sind geeignete Zementmischungen zu verwenden und die Dichtigkeit ist zu überwachen. Dabei muss das zunehmende Alter unserer Speicherinfrastruktur berücksichtigt werden. Biologische Prozesse in den Speichern müssen im hochzyklischen Betrieb beachtet werden, um eine Beeinträchtigung der Bohrungsintegrität durch mikrobiell induzierte Korrosion zu vermeiden.

Die Ergebnisse wurden in einem Stakeholder Workshop interessierten Spezialistinnen und Spezialisten von Betreibern, Behörden und Wissenschaftseinrichtungen als Onlineveranstaltung vorgestellt und intensiv diskutiert.

Teil II Eingehende Darstellung

- 1. Verwendung der Zuwendung und des erzielten Ergebnisses im Einzelnen, mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele: Der eigentliche Bericht findet sich ab S. 3
- 2. Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises: Diese wurden über die Schlussabrechnung von FIMA an den Projektträger weitergeleitet.
- Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit: Die Arbeiten sind was die Aktualität der Fragestellung betrifft (Speicherung von Erneuerbaren Energien in großen (TWh) Mengen) notwendig und zeitgemäß. Der Umfang der durchgeführten Arbeiten ist der Problemstellung angemessen.
- 4. Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse: Diese sind jeweils am Schluss der der thematischen Schwerpunkte im Berichtsteil b S. 3 aufgeführt
- 5. Fortschritte von anderen Stellen im Bereich des Vorhabens: die österreichische RAG hat ein Pilotvorhaben zur Untertage-H₂ Speicherung aufgesetzt. Weitere Forschungsvorhaben insbesondere zur Wasserstoffspeicherung haben zwischenzeitlich begonnen bzw. sind in Planung (DGMK-Vorhaben)
- 6. Veröffentlichungen

Publikationen, die im Rahmen des Projekts erfolgten:

Tabelle 1: Publikationen mit Projektzusammenhang

Einrichtung	Publikation
TUDa	Zain-Ul-Abedin, M. & Henk, A. (2020): Building 1D and 3D Mechanical Earth Models for Underground Gas Storage—A Case Study from the Molasse Basin, Southern Germany. Energies 2020, 13, 5722; doi:10.3390/en13215722).
KIT-GIK	Even, M., Westerhaus, M., Simon, V. (2020). Complex Surface Displacements above the Storage Cavern Field at Epe, NW-Germany, Observed by Multi-Temporal SAR- Interferometry, Remote Sensing, vol. 12, 3348; doi:10.3390/rs12203348.
	https://www.mdpi.com/2072-4292/12/20/3348/htm
KIT-IG	Klose, T., Chaparro, M. C., Schilling, F., Butscher, C., Klumbach, S., Blum, P., 2020. Fluid Flow Simulations of a Large-Scale Borehole Leakage Experiment. Transport in Porous Media, 1–21.
	Chaparro, M.C., Klose, T., Hirsch, A., Schilling, F., Butscher, C., Blum, P., 2020. Modelling of wellbore cement alteration due to CO2-rich brine interaction in a large-scale autoclave experiment. International Journal of Greenhouse Gas Control (under review).
KIT-TP	Müller, B. I. R.; Schilling, F. R.; Röckel, T.; Heidbach, O. (2018): Induced Seismicity in Reservoirs: Stress Makes the Difference. Erdöl, Erdgas, Kohle, 2018 (1), 33–37. doi:10.19225/180106
	Schilling, F. R.; Müller, B. I. R. (2018): Nutzung des Untergrundes vor dem Hintergrund der »Klima-Beschlüsse« von Paris 2015 (COP21) / Reaching the COP21 Goals of Paris (Climate Summit 2015) while using the Underground. Erdöl, Erdgas, Kohle, 2018 (2), 82–87
GFZ	Ziegler, M. O., and O. Heidbach (in review), Reduction of uncertainties of 3D Geomechanical-Numerical Models, J. Geophys. Res.
	Ziegler, M. O., and O. Heidbach (2020), The 3D stress state from geomechanical- numerical modelling and its uncertainties: a case study in the Bavarian Molasse Basin, Geothermal Energy, 8(1), doi:10.1186/s40517-020-00162-z

	Morawietz, S., O. Heidbach, K. Reiter, M. O. Ziegler, M. Rajabi, G. Zimmerman, B. Müller, and M. Tingay (2020), An open-access stress magnitude database for Germany and adjacent regions, Geothermal Energy, doi:10.1186/s40517-020-00178-5							
НоМе	Schröder, P., Deobald, D., Lerm, S., Kleyböcker, A., Weigt, J., Teitz, S., Würdemann, H.: Microbial processes in subsurface hydrogen storage, effects on borehole integrity and gas composition in porous aquifers (in Bearbeitung)							

Qualifizierende Arbeiten

lfG	Knöfel, S. (2018): "Geomechanische Charakterisierung der Eigenschaften von potentiellen Trennflächen in verschiedenen Salzgesteinen – Ein Beitrag zur Bewertung der Firstsicherheit im geschichteten Gebirge", Masterarbeit, TU BA Freiberg, 10.01.2018, 97 S.
KIT-TP	Hogl., A. (2020): Dichtigkeit von Tiefbohrzementen bei zyklischer Druck- und Temperaturbelastung, Bachelorarbeit KIT, 61 S.
KIT-GIK	Simon, V. (2019): Bestimmung füllstandsabhängiger Bodenbewegungen über einem Gasspeicher auf der Basis eines modifizierten Ansatzes zur interferometrischen Prozessierung von Sentinel-1 Daten, Masterarbeit, KIT, 83 S.

Software und Datensätze

Ziegler, M. O., and O. Heidbach (2020), Modelled stress state in the Bavarian Molasse Basin with quantified uncertainties, GFZ Data Services, Potsdam, doi:10.5880/wsm.2020.003

Heidbach, O., M. Ziegler, and D. Stromeyer (2020), Manual of the Tecplot 360 Add-on GeoStress v2.0, WSM Technical Report 20-01, 63 pp, GFZ Data Service, Potsdam, doi:10.2312/wsm.2020.001

Ziegler, M. O., M. Ziebarth, and K. Reiter (2019a), Manual of the Python Script Apple PY v1.0, WSM Technical Report 19-01, 22 pp, GFZ Data Services, Potsdam, doi:10.2312/wsm.2019.001

Ziegler, M. O., M. Ziebarth, and K. Reiter (2019b), Python Script Apple PY v1.0, GFZ Data Services, Potsdam, doi:10.5580/wsm.2019.001

Ziegler, M. O. (2018a), Manual of the Matlab Script FAST Calibration v1.0, WSM Tech. Report 18-01, 19 pp, Potsdam, doi:10.2312/wsm.2018.003

Ziegler, M. O. (2018b), Matlab Script FAST Calibration v1.0, GFZ Data Service, Potsdam, doi:10.5880/WSM.2018.003

Konferenzbeiträge

Neben den im Folgenden aufgelisteten Präsentationen als Vortrag und Poster wurden Zwischenergebnisse der Arbeiten auf den monatlichen SUBI Video-Projekttreffen vorgestellt und diskutiert.

- 29.-30.11.2018, Geo:N Statusseminar des Themenschwerpunktes Unterirdische Geosysteme, Berlin, Teilnahme, Diskussionsbeiträge
- O6.-07.05.2019, SUBI-Treffen in Bad Heiligenstadt, Vorträge und Diskussionsbeiträge von allen Arbeitsgruppen
- 09.-10.01.2020, SUBI-Treffen in Wiesbaden
 - Carlo Dietl: Laborexperimente zur Integrität von Speicher und Barriereformationen unter zyklischer Belastung Highlights
 - Till Popp: Laborexperimente an Salzgroßproben
 - Malte Westerhaus: The complex surface displacement field above the storage facilities Epe

- Sina Hale: THMC-Modellierung der Bohrung im Nah- und Fernfeld
- Thomas Röckel: Untersuchung natürlicher Analoga im Salz
- Andreas Henk & Muhammad Zain-ul-Abedin: THM-Multiphasen-Modellierung von Porenspeichern auf Reservoirskala
- Frank Schilling: Großskalige Experimente zur Dichtigkeit von Bohrlöchern bei zyklischer Belastung
- 10.11.2020, Abschlussworkshop als Videoseminar: Die Ergebnisse wurden in einem Stakeholder Workshop interessierten Spezialistinnen und Spezialisten, Betreibern, Behörden und Wissenschaftseinrichtungen auf einer Onlineveranstaltung vorgestellt und intensiv diskutiert.
 - Michael Schmöltzer, Bela Szöcs: Rolle der Gasspeicher in der Dekarbonisierung
 - Antje Kruse: Der Klimawandel und seine Folgen für Nordrhein-Westfalen
 - Stefan Meyer: Rechtlicher Rahmen der Untergrundspeicherung am Beispiel der Heliumkaverne S72
 - Frank Schilling: Sicherheit von Untergrundspeichern bei zyklischer Belastung: Funktionalität und Integrität von Speichern und Bohrungen
 - Stefan Meyer: Ölschaden im Kavernenfeld Epe 2014 ein (teures) Beispiel f
 ür mangelnde Bohrungsintegrit
 ät
 - Marcel Schulz: Technikumsexperimente zur Dichtigkeit von Speicherbohrungen bei zyklischer Belastung
 - o Sina Hale: THC-Modellierung von Technikumsexperimenten
 - Tobias Fabig: Laborexperimente an Salzgro
 ßproben & geomechanische Modellierung von Salzkavernen
 - Malte Westerhaus: Vertikale und horizontale Bodenbewegungen über Kavernenspeichern InSAR Beobachtungen & Modelle
 - Sarah Louis: Laborexperimente zur Integrität von Speicher und Barriereformationen unter zyklischer Belastung
 - Hilke Würdemann: Einfluss der mikrobiellen Besiedelung auf Korrosion und Fluidchemie
 - Muhammad Zain-Ul-Abedin: THM-multiphase modeling of a depleted gas reservoir
 - o Michael Schmöltzer, Bela Szöcs: Die Energieevolution vorantreiben mit Wasserstoff
 - Frank Schilling: Next Steps Ausblick

Weitere Vorträge

- 06.07.2017, Frank Schilling: Energiewende vor dem Hintergrund des Übereinkommens von Paris 2015 (COP21). Student Chapter, RWTH Aachen
- 06.09.2017, Frank Schilling: Energy systems evolutions/challenges following COP21. Anschließend Podiumsdiskussion. EAGE Sustainable Earth Science Conference, Malmö
- 11.-12.09.2017, Frank Schilling: D-F-Workshop zur Zukunft der binationalen Geowissenschaftlichen Forschung, Potsdam
- 14.11.2017, Oliver Heidbach: 3D geomechanisches Modell für den Großraum München. Workshop bei der Firma Erdwerk, München
- 14.11.2017, Frank Schilling: Resilience climate policy implementation: A German's view. Workshop auf Einladung des Landes und der Universität Thema, Alberta
- 30.11.2017, Oliver Heidbach: The 3D in-situ stress field and its induced changes in a geothermal reservoir. Petrotherm Seminar KIT, Karlsruhe
- 12.07.2018, Frank Schilling: "Neutron stress-strain Experiments under in situ pressure conditions to better understand upper crustal behaviour" am Beispiel von Reservoirverhalten. Kolloquiumsvortrag, Jena
- 10.10.2018, Frank Schilling: Conceptual ideas on multi-barrier systems. Geokolloquium Salzburg
- 26.10.2018, Frank Schilling: Geologische Speicherung von CO₂ in Ketzin: Nicht nur genehmigt, sondern akzeptiert. Bodenseetagung, Schaffhausen
- 13.03.2019, Oliver Heidbach: Einfluss von Unsicherheiten in Spannungsmagnituden auf das Spannungsfeld der bayerischen Molasse. Wissenstransfer Geothermieallianz Bayern, Garching bei München
- 19.06.2019, Oliver Heidbach: Quantifizierung und Reduzierung von Unsicherheiten im Spannungsfeld der bayerischen Molasse. Workshop & Präsentation SWM, München

- 03.07.2019, Frank Schilling: Triaxial in situ deformation experiments with pore pressure with Epsilon diffractometer. Europäische Neutronenstreutagung, St. Petersburg
- 22.11.2019, Oliver Heidbach: Spannungsfeldmodell der süddeutschen Molasse. 3D Modelle des süddeutschen Molassebeckens, Garching bei München
- 04.-08.05.2020, Oliver Heidbach: Quantification and Reduction of Uncertainties in 3D Stress Models. EGU General Assembly 2020 (online meeting), Wien
- 04.-08.05.2020, Oliver Heidbach: Geomechanical Assessment of Potential for Induced Seismicity. EGU General Assembly 2020 (online meeting), Wien
- 3.11. 2020, Birgit Müller: Geomechanik-Kurs für SPE Student Chapter, online
- 13.11.2020, Oliver Heidbach: From point-wise stress data to a continuous description of the undisturbed stress field. 49. Geomechanik-Kolloquium (online meeting), Freiberg
- 18.12.2020, Stefan Meyer: Impulsvortrag zur Untertage-Gasspeicherung beim Landesfachausschuss Umwelt und Energie der FDP-BW, Online
- 5.2.2020, Birgit Müller: Untertage-Gasspeicherung Übersichtsvortrag. Im Rahmen der (online) Reihe "Gschwätzt und G'frogt", Eppingen

Filmbeiträge:

- ZDF Sendung Planet E (5.4.2020). Tresor für CO₂ <u>https://www.zdf.de/dokumentation/planet-e/planet-e-tresor-fuer-co2-100.html</u>
- ARD Sendung Nano (25.8.2020): Das CO₂ Endlager <u>https://programm.ard.de/TV/Programm/Sender/?sendung=280073377807596</u>

Poster:

- Even, M. (2019): Adapting StaMPS for Jointly Processing Distributed Scatterers and Persistent Scatterers. Inst. Electr. Electron. Eng. Int. Geosci. Remote Sens. Symp. 2019, pp. 2046-2049.
- Heidbach, O. et al. (12.-14.12.2019): Quantifizierung von Unsicherheiten in 3D geomechanischnumerischen Modellen des Spannungsfeldes. Tage der Standortauswahl, Braunschweig
- Heidbach, O. et al. (10.02.2020): Quantification and Reduction of Uncertainties in 3D stress models. Geo.X Annual Meeting, Berlin
- Heidbach, O., Ziegler, M., Morawietz, S. (2020): Geomechanical Assessment of Potential for Induced Seismicity, EGU Gen. Assembly, Online 2020, doi:10.5194/egusphere-egu2020-10514
- Morawietz, S., Heidbach, O., Ziegler, M., Reiter, K., Rajabi, M., Zimmermann, G., Müller, B., Tingay, M. (2020): World Stress Map Beyond Orientations The First Quality Ranking Scheme for Stress Magnitude Data, EGU Gen. Assembly Online 2020, doi:10.5194/egusphere-egu2020-2884
- Müller, B. I. R.; Scheffzük, C.; Breuer, S.; Schilling, F. R. (17.-19.09.2018): Potential of in situ triaxial stress experiments using neutron time-of-flight diffraction on porous rocks for reducing the risk of subsidence and induced seismicity through gas production. German Conference for Research with Synchrotron Radiation, Neutrons and Ion Beams at Large Facilities, Garching
- Niederhuber, T.; Müller, B.; Rudolph, T.; Schilling, F. (25.-26.04.2019): Beitrag zur Geomechanischen Beurteilung von Gasspeichern. ÖGEW-DGMK Gemeinschaftstagung 2019, Celle, Deutschland
- Niederhuber, T.; Müller, B.; Rudolph, T.; Schilling, F.; Schmitt, D. R. (09.-13.12.2019): Reservoir Stress Path for Underground Gas Storage. Fall Meeting (AGU 100 2019), San Francisco, CA, USA
- Schulz, M.; Müller, B.; Schilling, F. (05.-08.03.2019): Analysis of injection data for pore pressure and minimum horizontal stress magnitude estimates in the Arbuckle Formation. 3rd Schatzalp Workshop on Induced Seismicity, Davos, Schweiz
- Schulz, M.; Müller, B.; Schilling, F. (14.-15.11.2019): Analysis of injection data for pore pressure and minimum horizontal stress magnitude estimates in the Arbuckle Formation. 14. Student Technical Congress (STC 2019), Aachen, Deutschland
- Voigtländer, A.; Leith, K.; Breuer, S.; Müller, I. R. B.; Scheffzük, C.; Schilling, F. R.; Krautblatter, M. (08.-13.4.2018): In situ strain detection of stress-strain relationships and their controls on progressive damage in marble and quartzite by neutron diffraction experiments. EGU General Assembly, Wien, Österreich
- Ziegler, M., Heidbach, O. (2020): Quantification and Reduction of Uncertainties in 3D Stress Models, EGU Gen. Assembly 2020, Online 2020, doi:10.5194/egusphere-egu2020-2821

Tabelle 2: verwendete Abkürzungen

AOM	anaerobe Methanoxidation
BiWa	Proben vom Standort Bierwang
C-A-S-H	Calciumaluminatsilikathydrat
CMC	Carboxymethylcellulose
COBRA	CO ₂ Borehole Research Apparatus
CPV	compressibility of pore volume
C-S-H	Calciumsilikathydrat
FIT	Formation Integrity Test
GAB	Geothermie Allianz Bayern
GC	Gaschromatographie
GFZ	Deutsches GeoForschungsZentrum
HF	Hydraulic Fracturing Test
HPV	Hochdruckzelle
IC	Ionenchromatographie
ICP-OES	Inductively coupled plasma optical emission spectrometry
КІТ	Karlsruher Institut für Technologie
Ktzi	Bohrungen am Standort Ketzin
LOT	Leak-Off Test
LVDTs	Linear Variable Differential Transformers = Differentialtransformatoren
LzRT	Letzte zementierte Rohrtour
M-S-H	Magnesiumsilikathydrat
ODE	Ordinary differential equation
PCR-DGGE	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese
PCR-DGGE p _{max} , p _{min}	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke
PCR-DGGE p _{max} , p _{min} P _p	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck
PCR-DGGE p _{max} , p _{min} P _p qPCR	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR
PCR-DGGE p _{max} , p _{min} P _p qPCR REM	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie
PCR-DGGE p _{max} , p _{min} P _p qPCR REM RMSE	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error
PCR-DGGE p _{max} , p _{min} P _p qPCR REM RMSE RSR	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio
PCR-DGGE p _{max} , p _{min} P _p qPCR REM RMSE RSR S1	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH Sh	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH Sh SRB	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH Sh SRB Sv	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien Vertikalspannung
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH Sh SRB Sv TH	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Kustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien Vertikalspannung thermo-hydraulisch
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH Sh SRB Sv TH THM	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien Vertikalspannung thermo-hydraulisch thermo-hydro-mechanisch
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH Sh SRB Sv TH THM WLD	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien Vertikalspannung thermo-hydraulisch thermo-hydro-mechanisch
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH SRB SV TH THM WLD WSM	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien Vertikalspannung thermo-hydraulisch thermo-hydro-mechanisch Wärmeleitfähigkeitsdetektor World Stress Map
PCR-DGGE pmax, pmin Pp qPCR REM RMSE RSR S1 S1-S3 S3 SCP SH SRB SV TH THM WLD WSM XRD	Polymerasekettenreaktion-Denaturierende Gradienten-Gelelektrophorese Maximale bzw. minimale Kaverneninnendrücke Porendruck real-time Polymerasekettenreaktion, auch quantitative PCR Rasterelektronenmikroskopie Root mean square error Regime Stress Ratio größte Hauptspannung Differenzspannung kleinste Hauptspannung Sustained casing pressure Maximale Horizontalspannung Minimale Horizontalspannung Sulfat-reduzierende Bakterien Vertikalspannung thermo-hydraulisch thermo-hydro-mechanisch Wärmeleitfähigkeitsdetektor World Stress Map X-Ray Diffraction, Röntgenstrukturanalyse

Vorbemerkung:

Im Rahmen des SUBI Projekts wurden zahlreiche Experimente in Labor- und Technikumsversuchen durchgeführt. Dazu wurden neue und weltweit einzigartige Technikumsexperimente aufgebaut und weiterentwickelt, die Ergebnisse modelliert und interpretiert. Die Experimente und Modellierungen sind skalen- und methodenübergreifend angesetzt und werden mit natürlichen Analoga (regionaler Maßstab) verglichen.

- Triaxialzellen-Laborversuche an Porenspeicher-Reservoirgestein und Deckgebirge (Gesteinslabor Jahns, Universität Halle-Wittenberg/HoMe),
- Dichtigkeitsversuche zur Bohrlochintegrität zementierter Bohrungen (KIT-TP)
- Experimentelle Laboruntersuchungen an Salzproben zur Bestimmung von Materialparametern und der Eigenschaften im Kontaktbereich Salz/Bohrlochzement (IfG)
- Untersuchung regionaler Analoga zum Langfristverhalten von Salz (P&P)
- Untersuchung mikrobiologischer Prozesse sowie deren Auswirkungen auf Korrosion, Scaling und Materialintegrität in Bezug auf den Speicherbetrieb (HoMe)

Ein weiterer Schwerpunkt lag auf der Modellierung relevanter Szenarien für die Dichtigkeit der Porenund Kavernenspeicher und deren Infrastruktur auf der Basis der experimentellen Ergebnisse und zur Prognose für das Monitoring:

- Modellierungen zur Bohrlochintegrität zementierter Bohrungen (KIT-TP und KIT-IG (Mod 1)
- Modellierung der speicherbetriebsabhängigen thermo-mechanischen Belastungen und Deformation von Kavernen im Salz (IfG) und der dazugehörigen Bohrungsinfrastruktur
- thermisch-hydraulisch-mechanisch (THM) gekoppelter Modellierungsansatz unter Berücksichtigung von Mehrphasenströmung in porösen Medien für Porenspeicher (TUDa)
- Entwicklung eines Workflows f
 ür die numerische Simulation von Porenspeichern unter zyklischer Belastung (TUDa)

Im folgenden Berichtsteil werden die Projektarbeiten der jeweiligen Arbeitsgruppen und ihre Ergebnisse und die daraus resultierenden Verwertungsmöglich thematisch ausgerichtet in 4 Kapiteln vorgestellt.

- 1. Poren-Reservoir und Deckgebirge Veränderungen im Speicherbetrieb
- 2. Dichtigkeit der Speicherinfrastruktur unter zyklischer Belastung - Technikumsexperimente und Modellierung
- 3. Geomechanische Untersuchungen zur Dichtigkeit von Salzkavernen
- 4. Unabhängige Überwachungsmöglichkeiten von Speichern, Prognosen von Oberflächendeformationen in Raum und Zeit

Im Kapitel 5 werden die Hauptergebnisse zusammengefasst.

Inhaltsverzeichnis

1		Poren-Reservoir und Deckgebirge – Veränderungen im Speicherbetrieb	11
	1.1	Ziele und Aufgabenstellungen	11
	1.2	Laborexperimente zu Änderungen poroelastischer Eigenschaften von Poren-speicher- Barriereformationen unter zyklischer Belastung	• und 12
	1.2	1 Frgebnisse der Kompressibilitätstests	
	1.2	2 Frgebnisse der Flüssigkeitsnermeabilitäts- und Snerrdruckmessungen	12
	1.2.3	3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen (Gesteinslabor Dr. Eberhard Jahns)	18
	1.3	Auftreten kritischer Phänomene bei Bruchstrukturen im Reservoirgestein	20
	1.3	1 Untersuchungsergehnisse	
	1.3.2	2 Zusammenfassung & Schlussfolgerungen	22
	1.4	Auswirkungen mikrobieller Aktivität auf Korrosion. Scaling und Materialintegrität für	den
		Betrieb geologischer Poren-Speicher	23
	1.4.1	1 Material und Methoden	23
	1.4.2	2 Ionenchromatographische Messungen	25
	1.4.3	3 Charakterisierung der verwendeten Gesteine und Fluide	25
	1.4.4	4 Ergebnisse Standort Bierwang	28
	1.4.	5 Ergebnisse der Charakterisierung von Fluidproben vom CO ₂ -Speicher in Ketzin	39
	1.4.	6 Ergebnisse Standort Neubrandenburg (Geothermieanlage)	41
	1.4.	7 Zusammenfassung	47
	1.5	THM-Multiphasen-Modellierung von Porenspeichern auf der Reservoirskala u Berücksichtigung des in situ Spannungszustands	unter 49
	1.5.3	1 Berücksichtigung des in situ Spannungszustandes (GFZ)	49
	1.5.2	2 THM-Multiphasen-Modellierung von Porenspeichern auf der Reservoirskala (TUDa)	55
	1.5.3	3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	63
2		Dichtigkeit der Speicherinfrastruktur unter zyklischer Belastung - Technikumsexperim und Modellierung	nente 65
	2.1	Ziele und Aufgabenstellungen	65
	21	Technikumsausstattung und Durchführung der Experimente	65
	2.1.	2 Modell	67
	2.1.3	3 Ergebnisse Autoklav Tvp I (KIT-IG)	69
	2.2	Technikumsexperimente mit dem Bohrlochsimulator Typ II (KIT-TP)	75
	2.3	THC-Modellierungen zur Dichtigkeit der Bohrlochzementation im Verbund Stahl –	
	-	Zement	79
	2.3.3	1 Thermisch-hydraulische-Simulationen von Permeabilitätstests zur Untersuchung des Verbunds Zement-Stahl (KIT-IG)	79
	2.3.2	2 THC-Simulation eines Langzeitexperiments zur Untersuchung chemischer Prozesse im System Zement-Stahl-Gestein-CO ₂ -Fluid (KIT-IG)	83
	2.3.3	3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen aus Technikumsversuchen und Modellierungen zur Bohrlochdichtigkeit (KIT-TP und KIT-IG)	86
3		Geomechanische Untersuchungen zur Dichtigkeit von Salzkavernen	88
-	3.1	Hintergrund, Aufgabenstellung und Arbeitsschwernunkte	88
	3.1	Grundlagen der Gassneicherung in Salzformationen (IfG)	۵۵
	3.2	Geomechanische Kriterien zum Integritätsnachweis	رو
	3.3	Langfristiges Verhalten von Salz – Untersuchung Geologischer Analoga (Diewak &	90
	J. 4	Partner)	91
	3.4.1	 Abschätzung kritischer geologischer Dehnungsraten im Salz 	91

	3.4.2	Rezenter Spannungszustand im Werra Kalirevier	96
	3.4.3	Auswirkungen von Spannungsänderungen auf die Stabilität untertätiger	
		Hohlräume im Salz – theoretische Betrachtung und Fallbeispiele	97
	3.4.4	Auswirkungen von Überdrücken auf die Integrität des Deckgebirges - Fallbeispiele	102
	3.5 Ha	avarien bei der Speicherung von Kohlenwasserstoffen (KW) in Salzformationen	407
	(11		107
	3.5.1	Kompilation von Risiko-Faktoren	107
	3.5.2		108
	3.6 La	bortechnische und numerische Untersuchungen der Integrität von Saizkäverhen	110
	261	Experimentelle Untersuchungen	110
	362	Experimentene Ontersuchungen	110
	363	Rewertung Geologische Dichtheit Salzkaverne bei maximalem Sneicherdruck n	118
	364	Bewertung Dichtheit / mechanische Integrität Casing-Installation	120
	37 50	blussfolgerungen und Emnfehlungen auf der Basis der Geomerhanische	120
	UI	ntersuchungen zur Dichtigkeit von Salzkavernen	125
4	U	nabhängige Überwachungsmöglichkeiten von Speichern. Prognosen	von
	0	berflächendeformationen in Raum und Zeit	127
	4.1 Zi	el und Aufgabenstellung	127
	4.2 Da	as Untersuchungsgebiet	127
	4.3 M	ethodische Arbeiten zur InSAR-Prozessierung	128
	4.3.1	M-SBAS	. 129
		131	
	4.3.2	DS-Vorprozessierung	132
	4.4 M	odellierung des Zeitverlaufs des druckabhängigen Signals durch einen visko-	
	el	astischen Ansatz für den Salzkörper	134
	4.5 M	odellierung des Verschiebungsfeldes über dem Kavernenfeld durch	
	Su	iperposition der Beiträge der einzelnen Kavernen	136
	4.6 Er	gebnisse	139
	4.6.1	Schlussfolgerung und Empfehlung	145
5	Zι	ısammenfassung	146
6	Lit	teratur	151
7	Ar	nlagen:	166
	7.1.1	Experimentelle Ausrüstung und Vorgehensweise	166
	7.2 De	etails zum Technikumsexperiment mit dem Bohrlochsimulator Typ I	174
	7.2.1	Versuchsdurchführung	174
	7.2.2	Versuche zu Materialeigenschaften des Zementsteins	176
	7.3 De	etailbeschreibung der Untersuchung Geologischer Analoga	182
	7.3.1	Basaltgänge von Buggingen	182
	7.3.2	Rezenter Spannungszustand im Werra Kalirevier	191
	7.3.3	Auswirkungen von Spannungsänderungen auf die Stabilität untertätiger	
		Hohlräume im Salz – weitere Fallbeispiele und Informationen	193
	7.3.4	Auswirkungen von Überdrücken auf die Integrität des Deckgebirges – weitere	
		Informationen und Fallbeispiele	195

1 Poren-Reservoir und Deckgebirge – Veränderungen im Speicherbetrieb

Beiträge zu den Arbeitspaketen Exp.1, Exp 3, Mod3, VGS 1, VGS 2, VGS 3 der HoMe/UniHalle, Gesteinslabor Dr. Eberhard Jahns, TUDa

1.1 Ziele und Aufgabenstellungen

Das Ziel der Untersuchungen am Gesteinslabor war es, mögliche Änderungen der poroelastischen Eigenschaften des Speichersystems zu dokumentieren und zu bewerten, die auf die zyklische Be- und Entlastung der Gesteine zurückzuführen sein könnten. Darüber hinaus sollte festgestellt werden, ob zyklische Be- und Entlastung die Permeabilität und den Sperrdruck der Deckschicht verändert (Abbildung 1). Die Aufgabe des Gesteinslabors Dr. Eberhard Jahns war deshalb die Durchführung zyklischer Kompressibilitätstests und kombinierter Flüssigkeitspermeabilitätstests / Sperrdruck-messungen an Reservoirsandstein und dem nach oben abdichtenden Mergel eines möglichen Porenspeichers im Voralpenland.



Abbildung 1: Schematische Darstellung eines Porenspeichers.

Das Ziel der Untersuchungen an der Uni Halle/Wittenberg zu den Bruchstrukturen, die in typischen Reservoirgesteinen auftreten, war, den Grenzzustand der Festigkeit besser beschreiben zu können. Bewertet wurden unter Anleitung von Prof. Lempp (beratend) von Mitarbeitern der Uni Halle Wittenberg und der HoMe die Ausbildung von Scherbändern und Rissen in Buntsandstein bei Veränderungen des Porendrucks.

Ziel der Untersuchungen mit den Technikumsexperimenten war herauszufinden, inwieweit Druck- und Temperaturänderungen zu Leckagen in der Bohrlochzementation führen können. Dazu galt es zunächst die typischen Speicherbelastungen wie Temperatur- und Druckänderungen, die beim Einund Ausspeichern von UGS auftreten können, im Technikumsmaßstab abzubilden, d.h. die Experimentierstände dahingehend weiterzuentwickeln. Die experimentellen Daten wurden mithilfe neuentwickelter Modelle interpretiert, um Aussagen zum Verbund Zement-Stahl zu bekommen.

Die Bedeutung mikrobiologischer Prozesse für den Speicherbetrieb ist bekannt aus der Speicherung von Stadtgas. Jedoch wurden die Aspekte der mikrobiellen Aktivität, der Biofilmbildung sowie deren Auswirkungen auf Korrosion, Scaling und Materialintegrität für den Betrieb geologischer Speicher bisher nicht systematisch untersucht. Die in SUBI durchgeführten Untersuchungen zielten darauf ab,

die Auswirkungen der unterirdischen Methaninjektion und Speicherung auf die natürliche mikrobielle Lebensgemeinschaft und die Geochemie der Wässer darzulegen. Dazu wurden folgende Aufgaben in Angriff genommen:

- Anwendung molekularbiologischer Methoden (Mikrobiomanalyse und qPCR) zur Identifizierung und Quantifizierung der beteiligten Mikroorganismen bzw. der stoffwechselphysiologischen Gruppen, die die Prozesse beim Speicherbetrieb dominieren
- Untersuchung wie unterschiedliche Bedingungen (Salinität, Temperatur, Zusammensetzung der Atmosphäre, Organikgehalt, Druck) die mikrobielle Aktivität und die Zusammensetzung der mikrobiellen Lebensgemeinschaft verändern
- Ableitung von Handlungsempfehlungen zur Verminderung mikrobiell beeinflusster bzw. induzierter Korrosion und ggfs. Erhöhung der Speichereffizienz

Bei den numerischen Simulationen im Reservoirmaßstab lag der Fokus auf der möglichen Nutzung von Untertage-Gasspeichern als Kurzeitspeicher für Strom aus regenerativen Quellen. Hierbei war es notwendig, unregelmäßige Lastwechsel zwischen Injektion und Produktion zu betrachten. Die Aufgaben umfassten die Entwicklung eines allgemein anwendbaren Workflows, der den *in-situ* Spannungszustand berücksichtigen kann. Beabsichtigt war dabei, im Reservoirmaßstab eine thermohydraulische (TH) Modellierung von Mehrphasenströmung in porösen Medien mit einer mechanischen Simulation (M) zur Berechnung von Spannungen und Deformation zu koppeln, um zu untersuchen, wie ein UGS auch bei hochfrequenten Ein- und Ausspeisezyklen und einer Nutzung als Kurzzeitspeicher sicher und effizient betrieben werden kann.

1.2 Laborexperimente zu Änderungen poroelastischer Eigenschaften von Porenspeicher- und Barriereformationen unter zyklischer Belastung

Beiträge zum Arbeitspaket Exp. 3, Gesteinslabor Dr. Eberhard Jahns

Der für die Untersuchung gewählte Standort ist eine ausgeförderte Kohlenwasserstoff-Lagerstätte. Sie wurde von Uniper SE entwickelt und befindet sich im Bayerischen Molassebecken. Die Deckschicht besteht aus einem Smektit-reichen, tonigen bis siltigen Mergel. Seine Porosität liegt im Mittel bei 2 %. Frühere Sperrdruckuntersuchungen führten zu einer Abschätzung des kapillaren Sperrdrucks zwischen 10 und 15 MPa (Dietl et al. 2018). Das Reservoir selbst besteht aus einem feinkörnigen Sandstein mit zwischengelagertem Kalkmergel. Aufgrund seiner hohen lithologischen Variabilität streut die Porosität des Reservoirs zwischen 3 % und 33 %. Die Gaspermeabilität variiert in erster Näherung als Funktion der Porosität zwischen 0,001 und 2700 mD. Das 3D-Spannungsfeld wurde anhand von Bohrkernmaterial mit Hilfe der Methode RACOS[®] (Rock Anisotropy Characterization On Samples; Braun et al. 2000; Braun & Reinhold 2017) untersucht. Die größte effektive und totale horizontale Hauptspannungsrichtung ist NNW-SSE bis N-S gerichtet und kann als Ergebnis der alpinen Orogenese betrachtet werden. Das Spannungsfeld ist abschiebend mit der größten einengenden Hauptspannung in der Vertikalen.

Die experimentelle Ausrüstung und die generelle Vorgehensweise der Tests sind im Anhang beschrieben.

1.2.1 Ergebnisse der Kompressibilitätstests

1.2.1.1 Ergebnisse CPV-Tests am Reservoirsandstein

An jeder Probe wurden zwei CPV-Tests durchgeführt. Zwischen den beiden CPV-Tests lagen zwei Depletiontests – unterbrochen von einem Aging-Zyklus, der im Fall des Reservoirsandsteins aus 21 Beund Entlastungspfaden bzw. Entleerungs-/Wiederbefüllungspfaden mit dem Porenfluid bestand. Dabei entsprach ein Be- und Entlastungspfad einem Jahr Speicherbetrieb. Im Fall von Probe S02 wurde



die doppelte Anzahl an Tests durchgeführt (Testserien S02a und S02b), wobei sich die Bedingungen bei den jeweiligen Depletiontests und Aging-Zyklen leicht voneinander unterschieden.

Abbildung 2: Poroelastische Parameter aus den CPV-Tests: a) Gesamtkompressibilität; b) Porenvolumenkompressibilität.

Das Aging bzw. die Alterung der Proben spiegelte sich nicht in den poroelastischen Daten wider. Der Gesamtvolumenstrain und der Porenvolumenstrain änderten sich von CPV-Test 1 zu CPV-Test 2 und reflektieren damit die Konsolidierung der untersuchten drei Reservoirsandstein-Proben. Das zeigte sich vor allem für Probenzylinder S01: der Volumenstrain verringerte sich von CPV-Test 01 zu CPV-Test 02 um 80 %. Die poroelastischen Parameter Gesamtkompressibilität (c_{bc}) und Porenvolumen-kompressibilität (c_{pc}) änderten sich kaum vom ersten CPV-Test zum zweiten (Abbildung 2), wie sich beim Vergleich der ersten CPV-Tests für die Probensets S02a und S02b zeigte: beide CPV-Tests lieferten fast identische c_{bc} -Werte (3,02*10⁻⁴ MPa⁻¹ und 3,00*10⁻⁴ MPa⁻¹). Das Gleiche gilt auch für die zweiten CPV-Tests für diese Probensets mit Gesamtkompressibilitätsdaten von 2,88*10⁻⁴ MPa⁻¹ und 2,91*10⁻⁴ MPa⁻¹ (Abbildung 2a).

1.2.1.2 Ergebnisse der Depletiontests am Reservoirsandstein

Die beiden Depletiontests wurden durch Aging-Zyklen sowie einen CPV-Test voneinander getrennt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3 a-e zusammengefasst. Die Konsolidierung war am ausgeprägtesten für Probe S01 – wie die Volumenstraindaten (Abbildung 3a, b) zeigen. Kaum ein poroelastischer Parameter veränderte sich von Depletiontest 1 zu Depletiontest 2. Nur die Kornkompressibilität für Probe S01 verringerte sich vom ersten zum zweiten Test um 20 %. Dementsprechend änderte sich für diese Probe auch der Biot-Koeffizient α : er steigt von 0,68 in Depletiontest 1 auf 0,74 in Depletiontest 2. Für die Tests der Proben S02, S03 und S04 bleibt α konstant.

Der Kompaktionskoeffizient c_m veränderte sich vom ersten Entleerungspfad zum darauffolgenden Wiederbefüllen recht stark: Der während der "Depletion" beobachtete c_m -Wert war generell zweiviermal höher als der während der "Inflation" gemessene c_m -Wert (Abbildung 3a, b, c). Diese Beobachtung wurde auch während des Agings gemacht (siehe folgendes Kapitel).

1.2.1.3 Ergebnisse der Aging-Zyklen (Reservoirsandstein)

Die Agingzyklen folgen dem gleichen Prinzip wie der "Depletion-/Inflation"-Teil des Depletiontests. Daher können auch die Agingzyklen zur Bestimmung der poroelastischen Parameter c_m, (Abbildung 3f) c_{pp} und γ herangezogen werden – zumindest im Fall des Reservoirsandsteins, für den ein equilibrierter Fluidfluß bzw. Porendruck relativ schnell erzeugt werden konnte. Die Untersuchungen zeigen, dass Gleichgewichtsbedingungen nach dem ersten Entleerungs-/Wiederbefüllungspfad erreicht waren.



Abbildung 3: Poroelastische Parameter aus den Reservoir-Depletiontests und der Agingprozedur.

Das bedeutet, dass der Volumenstrain sich nach diesem ersten Durchgang nur noch leicht veränderte und sich folglich die Steigung der linearen Regressionsgerade im Porendruck vs. Volumenstrain-Diagramm (Abbildung 3f) für die einzelnen Proben bzw. Aging-Durchgänge kaum noch veränderte. Für die Proben S01, S02b und S04 lag der konstante Kompaktionskoeffizient zwischen $4*10^{-5}$ und $1*10^{-4}$ MPa⁻¹ (Abbildung 3f). Im Fall von Test S02a und S03 fluktuierte c_m zwischen $2*10^{-6}$ und $4*10^{-6}$ MPa⁻¹. Nur der *erste* Depletion-Ast *aller* Proben liefert jeweils deutlich steilere Regressionsgeraden und entsprechend höhere c_m-Werte: zwischen $8*10^{-5}$ und $^{-2}*10^{-4}$ MPa⁻¹ (Tests S01, S02b und S04), bzw. $4*10^{-6}$ bis $6*10^{-6}$ MPa⁻¹(Test S02a und S03). Offensichtlich musste sich der Reservoirsandstein während der ersten Porenfluidentleerung (re)konsolidieren, um Gleichgewichtsbedingungen herzustellen; erst dann wurden reproduzierbare poroelastische Daten erzeugt (Abbildung 3). Das Gleiche galt auch für den Entleerungsast des Depletiontests. Daraus folgt – und das gilt auch für die kommerziell angebotenen Kompressibilitätstests des Gesteinslabors, dass zumindest zwei Entleerungs-/Wiederbefüllungspfade durchlaufen werden müssen, um vertrauenswürdige Poroelastizitätsparameter zu erhalten. Gleichzeitig werden dadurch zusätzliche Daten erzeugt und eine belastbare Datengrundlage geschaffen. Die Tests S02a und S03 ergaben c_m -Werte, die um bis zu zwei Größenordnungen geringer sind als die entsprechenden Daten für die Tests S01, S02b und S04. Grund dafür ist die Tatsache, dass bei den beiden erstgenannten Tests nicht nur der radiale Umschließungsdruck S_3 , sondern auch die Axiallast S_1 während des Entleerens des Porenfluids zusammen mit dem Porendruck heruntergefahren wurde.

1.2.1.4 Ergebnisse der CPV-Tests am Deckschicht-Mergel

Der Mergel erfuhr während der CPV-Tests 3 % bis 6,5 % Volumenstrain und damit mehr als doppelt soviel Volumenstrain wie der Reservoirsandstein (Vergleich Abbildung 2 a mit Abbildung 4 a). Allerdings ist die Abnahme des Volumenstrains von CPV-Test 1 zu CPV-Test 2 deutlich höher als beim Sandstein. Während CPV-Test 2 erfuhren beide Deckschichtproben nur 10 % des Volumenstrains von CPV-Test 1 (Abbildung 4 a).

Die Gesamtkompressibilität c_{bc} änderte sich von CPV-Test 1 zu CPV-Test 2 kaum, war aber für Probe M02 ungefähr doppelt so hoch wie für Probe M01:

- Probe M01: CPV 1: 8*10⁻⁵ MPa⁻¹; CPV 2: 1*10⁻⁴ MPa⁻¹
- Probe M02: CPV1 3*10⁻⁴ MPa⁻¹; CPV 2: 2*10⁻⁴ MPa⁻¹.

Die Gesamtkompressibilität lag damit in einem ähnlichen Größenordnungsbereich wie die in den CPV-Tests ermittelte Gesamtkompressibilität des Reservoirsandsteins (2+10⁻⁴ MPa⁻¹ bis 4+10⁻⁴ MPa-1). Die geringen Änderungen in der Gesamtkompressibilität deuten darauf hin, dass auch im Deckschichtmergel keine Materialermüdung aufgrund des Agings auftrat (siehe Abschnitt 3.5). Die Poroelastizität scheint also auch für den Deckschichtmergel über den gesamten Versuchsverlauf hinweg erhalten zu bleiben.

1.2.1.5 Ergebnisse des Agings für den Deckschichtmergel

Die an die geringe Porosität und Permeabilität des Mergels angepasste Aging-Prozedur bestand aus 18 Entlastungs-/Belastungszyklen und erlaubte die Bestimmung des modifizierten Kompaktionskoeffizienten c_{mm} als lineare Regressionsgerade im Porendruck vs. Volumenstrain-Diagramm (Abbildung 4 (b)). Der *modifizierte* Kompaktionskoeffizient c_{mm} war mit dem *konstanten* Kompaktionskoeffizienten c_m von der Aging-Prozedur des Reservoirsandsteins vergleichbar, obwohl zur Ermittlung von c_{mm} nicht die Equilibrierung von Porenfluidfluß und Porenfluiddruck abgewartet wurde (siehe auch Abbildung 3f). Der Volumenstrain aus den Agingtests an der Deckschicht entsprach dem Axialstrain beim Sandstein-Agingzyklus.

Die c_{mm} -Daten für Probe M01 lagen zwischen 6*10⁻⁵ und 2*10⁻⁴ MPa⁻¹, im Fall von Probe M02 bei ca. 5*10⁻⁴ MPa⁻¹ – und damit im gleichen Bereich wie die c_m -Werte für die Reservoirsandstein-Tests S01 und S02b bzw. ein bis zwei Größenordnungen über den c_m-Daten für die Sandsteintests S02a und S03. Die letzteren wurden unter ähnlichen Messbedingungen wie die Mergelproben getestet (also bei gleichzeitigem Absenken von S₁ und S₃). Obwohl die c_{mm} -Werte des Deckschicht-Mergels im Bereich von etwa einer Größenordnung streuen (für beide Proben), gab es keinen gesetzmäßigen Trend zu deutlich höheren oder niedrigeren c_{mm} -Werten mit zunehmendem Aging. So lieferten in Abbildung 4 b z.B. die Wiederbefüllungspfade 1 und 18 die höchsten c_{mm} -Werte, während die Wiederbefüllungspfade 8 und 11 unabhängig voneinander sehr niedrige c_{mm} -Daten ergaben.

Anders als der Reservoirsandstein brauchte der Deckschichtmergel keine Rekonsolidierung, um im Agingtest reproduzierbare Kompaktionskoeffizienten zu liefern: alle *c_{mm}*-Daten vom ersten

Entleerungspfad bis zum letzten Wiederbefüllungspfad waren – trotz der leichten Streuung – vergleichbar (Vergleiche Abbildung 3f und Abbildung 4).

Aus der Änderung des Umschließungsdrucks mit sich änderndem Porendruck ließ sich der Entleerungskoeffizient γ (auch als Kopplungskoeffizient zwischen Radialspannung und Porendruck $\frac{\Delta S_3}{\Delta P_p}$) berechnen (siehe Abschnitt 2.1.3). Für die Reservoirsandstein-Proben lag γ zwischen 0,60 und 0,87 – in einem für Sandsteine typischen Bereich (eigene, unveröffentlichte Daten des Gesteinslabors). Für den Deckschicht-Mergel lag der Entleerungskoeffizient deutlich höher: Im Fall von Probe M01 zwischen 6 und 9 und für Probe M02 sogar zwischen 11 und 14. Die Radialspannungen im Caprock reagierten also sehr viel sensibler auf Änderungen des Porendrucks, als dies für den Reservoirsandstein der Fall war. Umgekehrt lässt sich sagen, dass Änderungen im Umschließungsdruck sich im Reservoirsandstein viel stärker im Porendruck niederschlugen, als dies für die Deckschicht der Fall war.



a)

b)

Abbildung 4: a) Gesamtkompressibilitätsdaten für den Deckschichtmergel (Probe M01) anhand der CPV-Tests. b) Modifizierter Kompaktionskoeffizienten für die gleiche Probe aus der Agingprozedur.

1.2.2 Ergebnisse der Flüssigkeitspermeabilitäts- und Sperrdruckmessungen

1.2.2.1 Testverlauf und Versuchsparameter für die Flüssigkeitspermeabilitäts-und Sperrdruckmessungen

Die Messungen wurden bei einem Umschließungsdruck von 38,5 MPa und einer Temperatur von 50°C durchgeführt. Für die einzelnen Entlastungspfade im Rahmen des Agingzyklus (20 Ent- und Belastungsdurchgänge) wurde der Umschließungsdruck komplett abgelassen und anschließend bei der Wiederbelastung auf ca. 38 MPa eingestellt. Das verwendete Porenfluid entsprach dem der Kompressibilitätstests (17 g NaCl pro Liter H₂O, wie das Formationswasser im Porenspeicher).

1.2.2.2 Testergebnisse Flüssigkeitspermeabilität

Es wurden zwei Mergelproben auf Flüssigkeitspermeabilität und Sperrdruck untersucht. Beide Proben ergaben sehr niedrige Flüssigkeitspermeabilitäten, die nach dem (und vermutlich durch das) Aging noch abnahmen. Probe MP01 lieferte *vor dem Aging-Zyklus* eine sehr geringe Permeabilität von lediglich 9 * 10⁻²² m² (Abbildung 5). *Nach dem Aging* hatte sich die Flüssigkeitspermeabilität auf 5 * 10⁻²² m² verringert (Abbildung 6). Möglicherweise wurde die Probe durch das Aging so stark kompaktiert, dass die Permeabilität sank. Ein entsprechend hoher Volumenstrain während der CPV-Tests und dem Aging am Deckschicht-Mergel wurde nachgewiesen. Für die zweite Mergelprobe zur

Flüssigkeitspermeabilitäts- und Sperrdruckmessung MP02 wurde *vor* dem Aging eine Flüssigkeitspermeabilität von 1 * 10⁻²¹ m² beobachtet. Nach dem Aging, d.h. nach 20 Be- und Entlastungszyklen, die einen 20-jährigen Speicherbetrieb simulierten, war die Flüssigkeitspermeabilität auf 8 * 10⁻²² m² abgesunken. Dieses Ergebnis verifiziert die Beobachtung an Probe MP01, dass wiederholte Be- und Entlastungshysteresen zu Konsolidierung des Caprocks und zur Erniedrigung der Permeabilität führen.



Abbildung 5: Ergebnisse der Flüssigkeitspermeabilitätsmessungen für Probe MP01 vor dem Aging.



Abbildung 6: Ergebnisse der Flüssigkeitspermeabilitätsmessungen für Probe MP01 nach dem Aging.

1.2.2.3 Testergebnisse kapillarer Sperrdruck

Die ersten Sperrdruckmessungen (pre-Aging) lieferten für beide Proben MP01 und MP02 kein Sperrdruckdatum. Obwohl Probe MP01 für 106 Tage in der Sperrdruckkammer belassen wurde und auch Probe MP02 mehr als einen Monat getestet wurde und die Probe sukzessive mit Gasdrücken von 6 bis 20 MPa beaufschlagt wurde (bei einem Porenfluiddruck am Probenausgang von 0,5 MPa), konnte kein Gasdurchbruch festgestellt und dementsprechend auch kein kapillarer Sperrdruck gemessen werden. Das kann daran liegen, dass beide Proben eine sehr geringe Flüssigkeitspermeabilität < 10⁻²¹ m² besaßen und der Sperrdruck größer als 20 MPa war. Da kein pre-Aging-Sperrdruck gemessen werden konnte, wurde nach dem Aging-Zyklus und der post-Aging-Flüssigkeitspermeabilitätsmessung keine weitere Sperrdruckmessung durchgeführt.

1.2.3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen (Gesteinslabor Dr. Eberhard Jahns)

Die Kompressibilitätstests zeigten, dass alle poroelastischen Parameter über alle Tests und Agingzyklen hinweg reproduzierbare und verifizierbare Ergebnisse lieferten. Die Gesamtkompressibilitäten und Kompaktionskoeffizienten von Reservoirsandstein und Deckschichtmergel sind vergleichbar. Dies deutet darauf hin, dass die Anfangsporoelastizität über die gesamte Testsequenz bestehen blieb und die untersuchten Sandstein- und Mergelproben nicht von Materialermüdung betroffen sind. Im Fall des Reservoirsandsteins zeigte sich, dass verlässliche *cm*-Werte nur an konsolidierten und equilibrierten Proben nach Durchlaufen von wenigstens zwei Entleerungs-/Wiederbefüllungspfaden ermittelt werden können.

Die Kompressibilitätstests zeigten bei fortschreitender Deformation die Konsolidierung der getesteten Probenzylinder, die vor allem während der ersten Deformationszyklen (CPV-Test 1 und Depletiontest 1) erreicht wurden. Nach dem Aging sind die Strainwerte deutlich kleiner.

Empfehlung für Tests: Ein weiteres wichtiges Ergebnis der Untersuchungen war die Beobachtung, dass sogar eine sehr langanhaltende Konsolidierung (sprich zwei CPV-Tests, ein Depletiontest und ein kompletter Aging-Zyklus: Dauer etwa eine Woche) nicht ausreicht, um die Setzung im Reservoirsandstein dauerhaft zu simulieren. Während der ersten Porenfluidentleerung baute sich immer deutlich mehr axialer Strain auf als während der darauffolgenden Wiederbefüllung bzw. aller weiteren Entleerungs-/Wiederbefüllungspfade. Dementsprechend war auch der konstante Kompaktionskoeffizient für den ersten Entleerungsast im Schnitt doppelt so hoch wie für alle darauffolgenden Entleerungs-/Wiederbelastungsyklen. Es scheint so, als habe der Sandstein sein Strain-Gedächtnis verloren und müsse erst wieder rekonsolidiert und reequilibriert werden, bevor er verlässliche Messwerte für c_m liefert. Daher empfehlen wir, zur korrekten Bestimmung dieses poroelastischen Parameters, mehrere Entleerungs-/Wiederbefüllungspfade durchzuführen. Der totale radiale Umschließungsdruck S_3 und das normalisierte Porenvolumen V_{pn} reagieren weniger empfindlich.

Bei gleichen Bedingungen (konstante Differentialspannung) erfuhr der Reservoirsandstein nur 37 % des Volumenstrains, den der Deckschichtmergel erlebt hat, dies wird durch die 80 % geringere Festigkeit des Mergels im Vergleich zum Sandstein (Ergebnis einer früheren, nicht publizierten Untersuchung am gleichen Reservoirsystem) begründet.

Generell lieferten beide Lithologien – trotz ihrer mineralogischen und strukturellen/texturellen Unterschiede – sehr ähnliche und vergleichbare Daten für die Gesamtkompressibilität und für den Kompaktionskoeffizienten. Der auffälligste Unterschied zwischen beiden Gesteinstypen lag darin, dass der Mergel seine im Verlauf der Testsequenz erfahrene Konsolidierung beibehielt, während der Sandstein sich nach jedem Teiltest wieder entspannte.

Die Flüssigkeitspermeabilitätsdaten zeigen, dass die Konsolidierung und der anfänglich hohe Volumenstrain im Mergel Auswirkungen auf die Durchlässigkeit haben. Für beide Proben verringert sich die Permeabilität um fast eine halbe Größenordnung vom Pre- zum Post-Aging.

Verwertung der Ergebnisse:

Kompressibilitätstests sind wesentlich für die Bestimmung des poroelastischen Verhaltens von Porenspeicher-Systemen (Reservoirsandstein plus Deckschicht).

Poroelastische Kennziffern für einen feinkörnigen Reservoirsandstein und seine mergelige Deckschicht können mit Hilfe sequentieller Kompressibilitätstests bestimmt werden. Mit Hilfe einer sog. Aging-Prozedur wurden ca. 20 Jahre Speicherbetrieb simuliert und Kompaktionskoeffizienten für beide Lithologien bestimmt. Obwohl sich beide Gesteine in ihrer Kompetenz und Festigkeit deutlich unterscheiden, zeigen sowohl Sandstein als auch Mergel eine hohe Reproduzierbarkeit der gewonnenen Daten. Daraus kann gefolgert werden, dass die Anfangsporoelastizität über den gesamten Testverlauf hinweg erhalten bleibt und Materialermüdung während der gesamten experimentellen Deformationsgeschichte keine Rolle spielt. Dies kann in der langfristigen Planung für bestehende und neue Porenspeicher verwertet werden.

Die Flüssigkeitspermeabilitätsmessungen zeigte, dass mit zunehmendem Aging die Konsolidierung des Deckschichtmergels zunahm und die Durchlässigkeit des Mergels geringer wurde. Zusammen mit dem generell als sehr hoch anzunehmenden Sperrdruck von ± 20 MPa deutet dies auf ein großes Rückhaltevermögen des untersuchten Porenspeichersystems hin. Hier ist ebenfalls eine Übertragbarkeit der Untersuchungen auf andere Speicher gegeben, da nun die Dichtigkeitsentwicklung über lange Zeiträume besser beurteilt werden kann.

1.3 Auftreten kritischer Phänomene bei Bruchstrukturen im Reservoirgestein

Beitrag zum Arbeitspaket Exp 1 HoMe/Universität Halle-Wittenberg

1.3.1 Untersuchungsergebnisse

Die Triaxialexperimente mit Reservoirsandsteinen bei Variation des Porendrucks, die unter Anleitung von Prof. Dr. Christof Lempp (früher Universität Halle – Wittenberg) ausgewertet wurden, und im Wesentlichen in der Arbeit von Lempp et al. (2020) veröffentlicht wurden, ergaben für die Theorie der Felsmechanik neue Gesichtspunkte. In den Arbeiten wurden Mehrstufen-Triaxialversuche als Analog-Modelle für tektonische Prozesse in der Erdkruste interpretiert. Ein Schwerpunkt lag auf der Analyse der entstandenen Versagensmuster im Gestein als Folge der Variationen der Spannungen und des Porendrucks.

Untersucht wurden zwei typische Vertreter (Abbildung 7) von Reservoirsandsteinen: a) ein Bebertal-Sandstein mit einer Porosität von 12-23 % und einem Kf Wert (Durchlässigkeitsbeiwert) für Wasser von 4,7 10⁻⁵ m/s und b) ein Sandstein aus dem Birkigt Steinbruch mit einer Porosität von 23-28 % und einem Kf Wert von 4,7 10⁻² m/s.



Abbildung 7: Ansicht von Bohrkernen und dazugehörigen Dünnschliffen der beiden untersuchten Reservoirsandsteine im Vergleich. Der Bebertalsandstein BT ist ein Oberes Rotliegend Dünensandstein, der Birkigt (BIR) Mittlerer Buntsandstein ist ein fluviatiler Sandstein (Abbildungen modifiziert nach Lempp et al. (2020)).

Nach den Belastungen wurden die Proben auf die Versagensmuster untersucht. Generell konnten zwei verschiedene Versagensmuster ermittelt werden.

- a) Ausbildung von Scherbändern (Abbildung 8)
- b) Risse Abbildung 10



Abbildung 8: Beispiele für Scherbänder mit multiplen Scherbrüchen, bei denen sich makroskopisch noch kein Bruch entwickelt hatte. Das Muster entwickelte sich unter den Orientierungen im Kern, die in Übereinstimmung mit dem Mohr-Coulomb Ansatz stehen.



Abbildung 9: Einzelner Scherbruch (blauer Pfeil) und ein horizontaler Extensionsbruch (grüner Pfeil)). Der Extensionsbruch entwickelte sich nach dem Scherbruch.



Abbildung 10: Variable Rissorientierungen im Bebertalsandstein

Bei den Tests konnten keine ursächlichen Zusammenhänge zwischen Veränderungen des Porenfluiddruckes und unterschiedlichen Musterbildungen im Fels-Feststoff gefunden werden. In den Testserien hat sich dennoch gezeigt, dass die Scherbänder sich eher bei geringen Porendrücken gebildet haben, während die Brüche/Risse eher bei hohen Porendrücken ausgebildet wurden.

Dabei haben sich die hellen Bereiche der Scherbänder so ausgebildet, dass sie mit der Orientierung kritisch gespannter Strukturen nach Mohr-Coulomb übereinstimmten. Die Risse hingegen wiesen unterschiedliche Orientierungen auf. Wechselnde Porenfluid- und Feststoffdrücke verursachten sowohl die Entstehung als auch das Verschwinden von kritischen Phänomenen, wie z.B. der Scherbänder. Dies ist ein typisches Zeichen für fraktale Strukturen (hier Felsbeispiel Sandstein). Während der Triaxialversuche bilden quasistatische und kinematische kritische Phänomene zufällige und chaotische Abfolgen. Die Ausbildung der Risse war zudem auch oftmals hörbar.

1.3.2 Zusammenfassung & Schlussfolgerungen

- Die Mohr-Coulomb-Bedingung als Grenzzustand der Festigkeit konnte für Gesteine bestätigt werden, wenn diese als fraktale Strukturen betrachtet werden (Lempp et al. 2020)
- Direkte einfache ursächliche Zusammenhänge zwischen Veränderungen des Porenfluiddruckes und unterschiedlichen Musterbildungen im Fels-Feststoff konnte nicht gefunden werden.
- Wechselnde Porenfluid- und Feststoffdrücke verursachen sowohl die Entstehung als ebenso das Verschwinden von kritischen Phänomenen. Dies ist typisch für fraktale Strukturen (hier Felsbeispiel Sandstein).

Durch die Berücksichtigung kritischer Phänomene, die dem fraktal strukturierten Fels eigen sind, kann eine andere, von den klassischen Materialwissenschaften abweichende Betrachtung des mechanischen Verhaltens von Fels etabliert und dessen Verhalten auf lange Sicht physikalisch voraussichtlich besser erklärt werden.

1.4 Auswirkungen mikrobieller Aktivität auf Korrosion, Scaling und Materialintegrität für den Betrieb geologischer Poren-Speicher

Beiträge zu den Teilprojekten Exp 1, VGS 2 und VGS 3 durch die HoMe

Im Rahmen der geologischen Speicherung von Stadtgas wurde die Relevanz mikrobiologischer Prozesse für den Speicherbetrieb erkannt. Jedoch wurden die Aspekte der mikrobiellen Aktivität, der Biofilmbildung sowie deren Auswirkungen auf Korrosion, Scaling und Materialintegrität für den Betrieb geologischer Speicher bislang nicht systematisch untersucht. Im Rahmen des Teilprojektes Mikrobiologie galt es, die Auswirkungen der unterirdischen Methaninjektion und -speicherung auf die natürliche mikrobielle Lebensgemeinschaft und die Geochemie der Wässer zu erforschen. Die fundierte Analyse der Veränderlichkeit des geologischen Systems und die Bewertung der ökologischen und technischen Auswirkungen im Gesamtkontext sind wesentliche Voraussetzungen für die dringend notwendige, wissenschaftlich begründete Festlegung der Anforderungen an die Materialien, die in der obertägigen Anlage und in den Bohrungen verwendet werden. Die Forschungsarbeiten im Rahmen des Teilprojektes trugen dazu bei, Handlungsempfehlungen für einen sicheren und effizienten Anlagenbetrieb zur unterirdischen Methanspeicherung zu entwickeln.

Zur Erreichung der Arbeitsziele wurden schwerpunktmäßig folgende Aspekte und Fragestellungen untersucht:

- 1. Mit Hilfe molekularbiologischer Methoden (Mikrobiomanalyse und qPCR) sollten die beteiligten Mikroorganismen bzw. stoffwechselphysiologische Gruppen, die die Prozesse beim Speicherbetrieb dominieren, identifiziert und quantifiziert werden.
- 2. Wie verändern unterschiedliche Bedingungen (Salinität, Temperatur, Zusammensetzung der Atmosphäre, Organikgehalt, Druck) die mikrobielle Aktivität und die Zusammensetzung der mikrobiellen Lebensgemeinschaft?
- 3. Welche Handlungsempfehlungen können zur Verminderung mikrobiell beeinflusster bzw. induzierter Korrosion aus den Ergebnissen abgeleitet werden? Unter welchen Bedingungen kann die Speichereffizienz erhöht werden?

1.4.1 Material und Methoden

1.4.1.1 Zusammensetzung der Langzeitversuche und Charakterisierung der mikrobiellen Gemeinschaft

Um den Einfluss der Methan (CH₄)- bzw. Wasserstoff (H₂)-Exposition auf mikrobielle Biozönosen zu untersuchen, wurden Langzeitversuche unter unterschiedlichen Bedingungen in Bezug auf den Druck und die Gaszusammensetzung durchgeführt. Dafür wurden Ansätze unter anoxischen Bedingungen mit natürlichem Fluid vom Standort Bierwang und als Referenzgestein Frankendolomit in Glasflaschen angesetzt und bei 40 °C unter atmosphärischem Druck (1 bar) oder unter Hochdruck (41 bar) in Hochdruckzellen (HPV) inkubiert. Als mögliche Kohlenstoffquellen wurden CO₂, Acetat oder Methan verwendet. Die Ansätze wurden entweder mit einer H_2/CO_2 - oder CH_4/CO_2 -haltigen Gasphase beaufschlagt. Die Gasmischung enthielt Helium als Tracer zur Detektion evtl. auftretender Wasserstoffverluste durch Undichtigkeiten. Um die mikrobielle Aktivität zu bestimmen, wurde in regelmäßigen Abständen die Änderung der Gaszusammensetzung erfasst. Zudem wurden relevante chemische Parameter im Fluid wie die Zusammensetzung und die Konzentration der organischen Säuren, die Sulfat- und Eisenkonzentrationen sowie der pH-Wert und die Leitfähigkeit bestimmt. Um die Bedingungen denen im Bohrloch anzunähern und mikrobiell induzierte Korrosionsprozesse zu untersuchen, wurden in einige Ansätze Schwarzstahlcoupons eingesetzt. Die Bestimmung der Korrosionsraten half, die Auswirkungen der CH₄- bzw. H₂-Injektion und der Biofilmbildung auf die Funktionalität und die Integrität von Speichern und Bohrungen zu bestimmen.

Um zu untersuchen, welchen Einfluss die Temperatur in Verbindung mit der Gasphase auf die mikrobielle Aktivität und die mikrobielle Gemeinschaft hat, wurden Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck mit Lagerstättenwasser aus Neubrandenburg angesetzt. Die Ansätze enthielten kein Gestein. Die Coupons wurden mit dem Biofilm angeimpft, der sich vorab auf einem Coupon gebildet hatte, der mit Lagerstättenwasser inkubiert worden war. Der Gasraum wurde entweder mit einer H₂/CO₂-haltigen (He/H₂/N₂/CO₂ = 3/8/72/17%) oder mit einer CO₂/CH₄-haltigen (N₂/CO₂/CH₄ = 75/13/12%) Gasphase beaufschlagt und bei 40 °C, 60 °C oder 80 °C unter atmosphärischem Druck inkubiert. Helium (He) wurde als *Tracer* verwendet, um mögliche Leckagen zu erkennen. Die mikrobielle Aktivität wurde anhand der Änderungen in der Gaszusammensetzung bestimmt. Die verschiedenen Versuchsansätze sind in Tabelle 3 gezeigt.

Ansatz	Beschreibung	Gasraum
NB40_1 und NB40_2	Stahlcoupon + Biofilm, 40 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig
NB40_3 und NB40_4	Stahlcoupon + Biofilm, 40 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
NB60_1 und NB60_2	Stahlcoupon + Biofilm, 60 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig
NB60_3 und NB60_4	Stahlcoupon + Biofilm, 60 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
NB80_1 und NB80_2	Stahlcoupon + Biofilm, 80 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig
NB80_4 und NB80_4	Stahlcoupon + Biofilm, 80 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
NB40_K1	Kein Stahlcoupon, 40 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig
NB60_K1	Kein Stahlcoupon, 60 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig
NB80_K1	Kein Stahlcoupon, 80 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig
NB40_K2	Kein Stahlcoupon, 40 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
NB60_K2	Kein Stahlcoupon, 60 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
NB80_K2	Kein Stahlcoupon, 80 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig

Tabelle 3: Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck bei 40 °C, 60 °C und 80 °C mit natürlichem Fluid aus der Geothermieanlage vom Standort Neubrandenburg. Die Gasphase wurde entweder mit einer H_2 - und CO_2 -haltigen ($He/H_2/N_2/CO_2 = 3/8/72/17$ %) oder mit einer CO_2 - und CH_4 -haltigen ($N_2/CO_2/CH_4 = 75/13/12$ %) Atmosphäre beaufschlagt.

Wenn sich auf den Coupons ein Biofilm etabliert hatte, wurde dieser molekularbiologisch untersucht. Die Biofilme auf den Stahlcoupons wurden mit Hilfe von Wattestäbchen abgenommen, während die im Fluid enthaltenen Mikroorganismen vom Fluid mittels Filtration abgetrennt wurden. Die Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaften wurde mit molekularbiologischen Methoden wie genetischem Fingerprinting, Polymerasekettenreaktion-Denaturierender Gradienten-Gelelektrophorese (PCR-DGGE) und INVIEW Microbiome Profiling 3.0 (Eurofins Genomics Germany GmbH) charakterisiert. Dafür wurde die genomische DNA einer Umweltprobe isoliert. Die weitere Bearbeitung erfolgte bei Eurofins Genomics. Für die Mikrobiom-Analyse wurde eine Region des 16S rRNA-Gens mittels PCR vervielfältigt. Die erhaltenen DNA-Produkte wurden anschließend im Hochdurchsatzverfahren sequenziert. Dafür werden die nach der Amplifizierung erhaltenen DNA-Fragmente an eine spezielle Matrix fixiert, sodass gleichzeitig bis zu Millionen Fragmente in einer Sequenzierreaktion ausgewertet werden können. Die Auswertung des komplexen Datensatzes und der Abgleich mit Datenbanken erfolgte bioinformatisch. Da bei den Mikrobiom- und DNA-Fingerprint-Analysen nur ein kleiner Abschnitt des Genoms (165 rRNA) untersucht wird, ist häufig nur eine Zuordnung zum nächstverwandten Mikroorganismus möglich. In dem Bericht wird bei der Identifizierung und Zuordnung der Mikroorganismen stets die nächstmögliche verwandte Gattung bzw. Spezies angegeben. Jedoch wird für das bessere Verständnis auf die Wortwahl "nächster charakterisierter Verwandter" weitestgehend verzichtet. Die Fähigkeiten der identifizierten Spezies (wie z.B. die Fähigkeit zur Nutzung von Sulfat als Elektronenakzeptor) gegenüber dem nächsten identifizierten Verwandten können abweichen.

Mit Hilfe der *real-time* PCR (qPCR) wurden die *Bacteria* insgesamt und einzelne stoffwechselphysiologische Gruppen wie beispielsweise SRB quantifiziert. Für die Quantifizierung von *Bacteria* wurde das 16S rRNA-Gen amplifiziert. Mit dem *dsrB*-Gen wurden SRB quantifiziert. Die phylogenetische Einordnung der identifizierten Mikroorganismen erlaubten zusammen mit den Änderungen in der Zusammensetzung der Gasphase und der Fluidchemie Rückschlüsse auf die mikrobielle Aktivität und die dabei katalysierten Prozesse in den Versuchen.

1.4.1.2 Gaschromatographische Messungen

Die Gaszusammensetzung wurde in regelmäßigen Zeitabständen mittels Gaschromatographie (GC) unter Verwendung eines Wärmeleitfähigkeitsdetektors (WLD) analysiert. Die Proben wurden mit einer Kieselgelsäule und einem Molsieb 13X (2,1 mm × 183 cm) unter Verwendung von Argon als Trägergas aufgetrennt. Die Gasproben (0,5 mL) wurden unter anoxischen Bedingungen mittels einer Spritze entnommen und manuell injiziert. Der Fluss des WLD-Detektors wurde auf 15 mL min⁻¹ und die Ofentemperatur auf 40 °C eingestellt, welche für 8,5 Minuten gehalten wurde. Anschließend wurde die Ofentemperatur linear mit einer Geschwindigkeit von 20 °C min⁻¹ auf 160 °C erhöht. Mit der verwendeten Methode konnten relative Gaszusammensetzungen, aber keine absoluten Gasmengen bestimmt werden. Aufgrund von Undichtigkeiten können die Gase langfristig aus den Hochdruckzellen bzw. Glasflaschen entweichen. Bei Wasserstoff handelt es sich um ein im Vergleich zu CO₂ und N₂ kleines Gasmolekül, weshalb es bei minimalen Leckagen schneller entweichen kann. Um den Wasserstoffverbrauch bzw. dessen Bildung richtig bewerten zu können, wurde Helium als *Tracer* eingesetzt. Da sich Helium bei Leckagen ähnlich wie Wasserstoff verhält, aber ansonsten inert ist, konnte anhand des Verhältnisses der Helium- und der Wasserstoffkonzentration geschlossen werden, ob Wasserstoff entwichen ist oder verstoffwechselt bzw. gebildet wurde.

1.4.2 Ionenchromatographische Messungen

Die Anionen im Fluid wurden ionenchromatographisch unter Verwendung von Metrohm 930 Compact IC Flex (Herisau, Schweiz) bestimmt. Vor der Analyse wurden die flüssigen Proben mit destilliertem Wasser verdünnt und mit einem 0,2 μ m Nylonfilter filtriert. Ein Probenvolumen von 20 μ L wurde injiziert und die Ionen mittels einer Metrosep-A Supp16 250/2.0-Säule aufgetrennt. Dabei wurde ein 7,5 mM Na₂CO₃- und 0,75 mM NaOH-Laufpuffer und eine isokratische, 60-minütige Methode verwendet. Der Fluss des Laufmittels wurde auf 0,15 mL min⁻¹ und die Ofentemperatur auf 65 °C eingestellt. Die Ionenkonzentrationen sind das Ergebnis einer Dreifach-Bestimmung. Die Quantifizierung der enthaltenen Anionen wurde mittels einer Kalibrierung mit Standardlösungen bestimmt.

1.4.3 Charakterisierung der verwendeten Gesteine und Fluide

Kondenswasser vom Standort Bierwang (Unterreit) (Erdgasspeicher)

Der Erdgasspeicher in Bierwang (Unterreit) befindet sich im Süddeutschen Molassebecken. Er dient im Wesentlichen zur Spitzenlastabdeckung von Erdgas oder zum Ausgleich des unterschiedlichen Sommer-/Winterbedarfs. Dazu wird das Erdgas verdichtet, in eine ehemalige Erdgaslagerstätte injiziert und bei Bedarf entnommen. Beim Ausspeichern wird das Erdgas auf Netzdruck entspannt. Tabelle 4:Chemische Zusammensetzung des Kondenswassers aus dem Erdgasspeicher in Bierwang (Unterreit), Deutschland. DOC: dissolved organic carbon bzw. gelöster organischer Kohlenstoff. Die fluidchemische Analyse wurde von Hydroisotop GmbH (Schweitenkirchen) durchgeführt.

lonen	Konzentration Bierwang
Chlorid	8,3 g L ⁻¹
Sulfat	1,3 mg L ⁻¹
Hydrogencarbonat	0,7 g L ⁻¹
Nitrat	< 1 mg L ⁻¹
Natrium	5,3 g L ⁻¹
Kalium	68,8 mg L ⁻¹
Calcium	138 mg L ⁻¹
Magnesium	55,8 mg L ⁻¹
Ammonium	30,1 mg L ⁻¹
DOC	25,3 mg L ⁻¹
Gesamtsalinität	~ 15 g L ⁻¹

Für die Langzeitversuche im Labormaßstab wurde natürliches Kondenswasser aus dem Erdgasspeicher in Bierwang (1500 m Tiefe) verwendet, welches von Uniper SE zur Verfügung gestellt wurde. Das Fluid vom Aquifer ist Na-Cl-HCO₃-dominiert und die Gesamtsalinität liegt mit rund 15 g L⁻¹ im mittleren Bereich (Tabelle 4). Die Fluid-Untersuchungen am Standort zeigten, dass im Lagerstättenwasser nur eine sehr geringe Sulfatkonzentration (SO₄²⁻) von ca. 1,3 mg L⁻¹ vorlag. Analysen eines benachbarten Standorts (Schnaitsee), der bisher nicht als Gasspeicher genutzt wurde, zeigten höhere Sulfatkonzentrationen von ca. 39 mg L-1. Wahrscheinlich ist die geringe Sulfatkonzentration auf einen signifikanten Verbrauch von Sulfat (SO42-) durch die anaerobe Methanoxidation (AOM) zurückzuführen, die infolge der jahrelangen Nutzung des Standorts als Erdgasspeicher eingetreten ist.

Fluid vom Pilotstandort Ketzin (CO₂-Speicher)

Im Rahmen von SUBIwurden die Untersuchungen aus CO2SINK/CO2MAN fortgeführt, weil der Pilotstandort in Ketzin eine einzigartige Möglichkeit bot, über Jahre hinweg Proben aus den Bohrungen zu entnehmen. Heute verfügen wir über hochauflösende Verfahren und können daher sehr viel genauere Aussagen treffen als es in den genannten Projekten möglich war. Daher konnten nun detailliert die Prozesse in Bohrungen infolge eines Eintrags von organischem Material während der Herstellung der Bohrungen untersucht werden.

Der ehemalige Pilot-CO₂-Speicher liegt im Norddeutschen Becken in der Nähe von Ketzin. Im Jahr 2004 wurde in Ketzin die erste europäische Pilotanlage für die *Onshore*-CO₂-Speicherung eingerichtet. Die Injektionsbohrung (Ktzi 201) und zwei Beobachtungsbohrungen (Ktzi 200 und Ktzi 202) wurden 2007 in die Stuttgart-Formation (Trias) abgeteuft (Prevedel et al. 2008). Zwischen 2008 und 2013 wurden ca. 65.000 t CO₂ in die Formation in einer Tiefe von etwa 600 bis 700 m injiziert. Das Reservoir für die CO₂-Injektion ist im Durchschnitt 80 m mächtig. Die Temperatur des Reservoirfluids beträgt in 650 m Tiefe ca. 35 °C. Der Ruhedruck im Reservoir liegt bei etwa 62 bar. Im Jahr 2011 wurde die Bohrung Ktzi P 300 in die Exter-Formation abgeteuft, die eine Speicherformation oberhalb des CO₂-Speichers erschließt (Wiese et al. 2013). Als Letztes wurde 2012 die Beobachtungsbohrung Ktzi 203 in die Stuttgart-Formation abgeteuft (Pellizzari et al. 2013).

Tabelle 5: Chemische Zusammensetzung des Fluids aus der Injektionsbohrung Ktzi 201 (Stuttgart-Formation) in Ketzin, Deutschland.

lonen	Konzentration Ktzi 201
Chlorid	144,4 g L ⁻¹
Sulfat	3,8 g L ⁻¹
Natrium	89,6 g L ⁻¹
Kalium	0,8 g L ⁻¹
Calcium	2,1 g L ⁻¹
Magnesium	1,0 g L ⁻¹
Strontium	53 mg L ⁻¹
Barium	< 1 mg L ⁻¹
Gesamtsalinität	~ 238 g L ⁻¹

Röntgenstruktur- (XRD) und Dünnschnittanalysen zeigten, dass der Sandstein aus der Stuttgart-Formation aus Quarz, Feldspat, Illit, Analcim, Anhydrit und amorphen Phasen besteht. Die Salinität des Fluids in der Stuttgart-Formation ist extrem hoch und liegt im Durchschnitt bei 235 g L⁻¹. Die Sulfat-Konzentration beträgt durchschnittlich 3,8 g L⁻¹ (Würdemann et al. 2010). Tabelle 5 gibt einen Überblick über die chemische Zusammensetzung des Lagerstättenwassers aus der Injektionsbohrung Ktzi 201.

Da CO₂ als Kissengas bei der Erdgasspeicherung verwendet wird, galt es herauszufinden, welchen Einfluss die unterirdische Langzeitspeicherung von CO₂ auf die mikrobiell induzierten Prozesse und die Zusammensetzung der Biozönose hat. Dafür wurden zwischen 2007 und 2014 regelmäßig Fluidproben aus der Injektionsbohrung Ktzi 201 genommen und die Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaft bestimmt.

Fluid vom Standort Neubrandenburg (Geothermieanlage)

Für die hochsalinen Langzeitversuche wurde natürliches Fluid aus der Geothermieanlage in Neubrandenburg (Norddeutsches Becken) verwendet. Das Fluid aus dem Aquifer ist Na-Cl-SO₄-Ca-dominiert und mit ca. 130 g L⁻¹ hochsalin (Tabelle 6).

Tabelle 6: Chemische Zusammensetzung des natürlichen Fluids aus der Geothermieanlage am Standort Neubrandenburg (Norddeutsches Becken). Die Daten wurden von BWG Geochemie Beratung GmbH zur Verfügung gestellt.

lonen	Konzentration Neubrandenburg			
Chlorid	76,7 g L ⁻¹			
Sulfat	1,0 g L ⁻¹			
Hydrogencarbonat	0,2 g L ⁻¹			
Nitrat	< 1 mg L ⁻¹			
Natrium	46,7 g L⁻¹			
Kalium	0,2 g L ⁻¹			
Calcium	2,2 g L ⁻¹			
Magnesium	0,6 g L ⁻¹			
Ammonium	25,7 mg L ⁻¹			
DOC	3,5 mg L ⁻¹			
Gesamtsalinität	~ 130 g L ⁻¹			

Referenzgestein Frankendolomit, Standort Kirchweidach

Für die Langzeitversuche wurde neben dem natürlichen Lagerstättenwasser das Referenzgestein Frankendolomit verwendet, das aus einer Bohrung in Kirchweidach stammt. Frankendolomit besteht vorwiegend aus einem Dolomit des Malms, welcher krypto- bis mikrokristallin ausgebildet ist (Angaben GEOenergie Bayern). Es handelt sich um Dolomitgestein, welches zu 90 % aus Dolomit mit der chemischen Formel CaMg(CO₃)₂ besteht. An Nebenbestandteilen sind laut REM-Analysen Ankerit, Tonminerale und auch Calcit enthalten. Durch die unterschiedlichen Ionengrößen von Calcium und Magnesium wird der Austausch von Ionen mit dem Medium verhindert, was Dolomit beständiger und schwerer löslich als z. B. Kalkstein macht.

1.4.4 Ergebnisse Standort Bierwang

Anreicherung einer aktiven Biozönose

Zum Anreichern einer aktiven Biozönose aus dem Lagerstättenwasser des Erdgasspeichers in Bierwang wurden unterschiedliche Proben entnommen: Lagerstättenwasser (abgekühltes Kondenswasser aus allen Bohrungen, 1500 m Tiefe), Fluid vor einer 3 µm-Filtereinheit sowie nach dem Durchfluss durch eine 3 µm- und 2 µm-Filtereinheit (Abbildung 11). Zusätzlich wurden Abstrichproben und Filtermaterial aus dem 3 µm-Filter und dem 2 µm-Filter gewonnen.



Abbildung 11: Gewinnung des Probenmaterials zur Anreicherung einer aktiven Biozönose aus dem Lagerstättenwasser sowie aus den Filterkerzen mit 2 μm- bzw. 3 μm-Porenweite.

Vorhergehende Untersuchungen haben gezeigt, dass die Versuchsdauer im Labor reduziert werden kann, wenn Langzeitansätze mit einem aktiven Biofilm vom jeweiligen Standort angeimpft werden. Aus diesen Gründen wurden zunächst Vorkulturen mit Stahlcoupons als Aufwuchsfläche für Biofilm angesetzt, mit denen die späteren Laborversuche angeimpft wurden.

Für die Vorkulturen wurde Lagerstättenwasser unter anaeroben Bedingungen in Flaschen gefüllt und z. T. mit Gestein versehen (Abbildung 12). Als Referenzgestein wurde Frankendolomit verwendet, da dieser die Salinität der Fluide nicht wesentlich beeinflusst. In diese Ansätze wurde je ein Stahlcoupon eingebracht, der mit Bioflim der Filterproben angeimpft wurde. Zusätzlich wurden Teile des Filters in das Fluid des jeweiligen Ansatzes gegeben (Tabelle 7). Eine Kontrolle ohne Coupon und Filterproben wurde mitgeführt. Die Ansätze wurden mit Stickstoff (N₂) beaufschlagt und unter atmosphärischem Druck bei 40 °C inkubiert.

Tabelle	7: l	Übersicht	t über	die	Versuchso	ansätze	zur	Anreicherung	ı einer	aktiven	Biozönose	aus	dem	Lagerstättenwo	isser	vom
Stando	rt Bi	erwang.														

	BiWa 1	BiWa 2	BiWa 3	BiWa 4
Fluid	vor 3 µm Filter	vor 3 µm Filter	vor 3 µm Filter	nach 2 µm Filter
Gestein	-	-	+	-
Coupon	-	+	+	+
Filterprobe	-	3 µm	3 µm	2 µm



Abbildung 12: Ansätze zur Anreicherung einer aktiven mirkrobiellen Gemeinschaft aus dem Lagerstättenwasser des Standorts Bierwang entsprechend der Tabelle 7.

Die Konzentration an gelöstem organischem Kohlenstoff (DOC: *dissolved organic carbon*) des Lagerstättenwassers beträgt durchschnittlich ca. 25 mg L⁻¹ (Tabelle 4). Damit stand der Anreicherungskultur eine organische Energie- und Kohlenstoffquelle zur Verfügung. Die mikrobielle Aktivität in den Ansätzen wurde anhand der Änderungen in der Gaszusammensetzung verfolgt. In Abwesenheit eines Stahlcoupons wurden CO_2 und CH_4 in geringen Mengen freigesetzt (Abbildung 13, BiWa 1), was entweder auf die Aktivität von Fermentierern oder von methylotrophen bzw. acetoklastischen Methanogenen zurückgeführt werden kann. Sobald im Ansatz ein Stahlcoupon und somit infolge von Korrosionsprozessen auch eine H_2 -Quelle vorlag, wurde das freigesetzte CO_2 verbraucht und CH_4 freigesetzt (Abbildung 13, BiWa 2–4). Die höchste Methanisierungsrate wurde in dem Ansatz BiWa 3 beobachtet, der neben einem beimpften Coupon auch Gestein enthielt (Abbildung 13, BiWa 3). Höchstwahrscheinlich wurden aus dem Frankendolomit einerseits essentielle Minerale herausgelöst, die das Wachstum der Mikroorganismen förderten. Andererseits bietet die Oberfläche des Gesteins Aufwuchsfläche zur Bildung von Biofilmen und stellt damit vermutlich ein günstiges Habitat für Mikroorganismen dar. Somit förderte die Zugabe von Gesteinsproben das mikrobielle Wachstum und die mikrobielle Stoffwechselaktivität.



Abbildung 13: Mikrobielle Aktivität in den Versuchsansätzen BiWa 1–4 zur Anreicherung einer aktiven mikrobiellen Gemeinschaft. Die Ansätze wurden mit einer N₂-Gasphase beaufschlagt und unter atmosphärischem Druck bei 40 °C inkubiert. In Abwesenheit eines Coupons und Biofilms (BiWa 1) gasten CO_2 und CH_4 langsam aus dem Fluid aus. In Anwesenheit eines angeimpften Coupons wurde CH_4 mikrobiell gebildet.

Um zu klären, welche Mikroorganismen aus dem Lagerstättenwasser für die mikrobielle Aktivität verantwortlich sein könnten, wurde die genomische DNA aus zwei Abstrichproben der Filterkerzen extrahiert und die Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaft mittels einer Mikrobiomanalyse bestimmt. Mit diesem auf 16S rRNA-basierten Verfahren wurde eine relativ große Diversität an Bakterien und Archaeen in den Proben nachgewiesen (Abbildung 14A–B).

A) Bakterielle Biozönose



B) Archaeelle Biozönose:

Abbildung 14: Charakterisierung der bakteriellen (A) und archaeellen (B) Lebensgemeinschaften auf Gattungsebene in Filterproben aus dem Erdgasspeicher in Bierwang. A) Vertreter der Fermentierer sind in blauen und der Sulfatreduzierer in roten Farbabstufungen dargestellt. Der acetogene Genus Acetobacterium ist gelb dargestellt. B) Vertreter der hydrogenotrophen Methanogenen sind in mint-grünen Farbabstufungen und die Methylotrophen in laub-grünen Farbabstufungen dargestellt.

Die bakterielle Gemeinschaft wurde vor allem durch unklassifizierte und diverse gering abundante Mikroorganismen dominiert, was an dieser Stelle erneut verdeutlicht, dass die Zusammensetzung der mikrobiellen Biozönose im Untergrund weitestgehend unbekannt ist. Dies erschwert die Beurteilung ihrer Funktion im Habitat und damit die Ableitung der katalysierten Prozesse sowie die Entwicklung von Handlungsempfehlungen zur Vermeidung von Prozesstörungen. Um die Fähigkeit einzelner Organismen besser einschätzen zu können, sind umfassende Analysen der mikrobiellen Erbinformation und mikrobiologische Prozessstudien nötig. Zu den dominanten bakteriellen Gattungen, die im Lagerstättenwasser identifiziert wurden, gehörten fermentierende Bakterien der Gattungen (Abbildung 14A, blaue Farben) *Pelobacter* (Aklujkar et al. 2012; Imachi et al. 2007), *Thermovirga* (Dahle and Birkeland 2006) und *Mesotoga* (Ben Hania et al. 2013; Nesbø et al. 2012). Neben Fermentierern wurden SRB der Gattungen *Desulfuromonas* (Finster et al. 1994; Finster et al. 1997) und *Desulfovibrio* (Mechalas and Rittenberg 1960) sowie einige gering abundante SRB identifiziert (Abbildung 14A, rote Farben). *Acetobacterium*, das mit 6 bis 9 % relativer Abundanz vertreten war (Abbildung 14A, gelb), kann dagegeben CO₂ und H₂ zu Acetat assimilieren und ist daher der Gruppe der acetogenen Bakterien zuzuordnen (Bache and Pfennig 1981; Balch et al. 1977; Ragsdale and Pierce 2008). Die archaeelle Biozönose wurde insbesondere von hydrogenotrophen Methanogenen der Gattungen *Methanobacterium* (Battumur et al. 2016), *Methanomassiliicoccus* (Dridi et al. 2012), *Methanocalculus* (Lai et al. 2002; Zhilina et al. 2013) sowie von unklassifizierten *Methanosarcinales* dominiert (Abbildung 14B, mint-grüne Farben). Die Gattung *Methanosarcina*, die neben der hydrogenotrophen Methanogenese auch den acetoklastischen (Substrat: Acetat) und den methylotrophen Weg (Substrat: C1-Verbindungen wie Methylamine) beschreitet (Hutten et al. 1980; Müller et al. 1986), gehörte mit mindestens 20% relativer Abundanz zu der dominanten Gattung innerhalb der Archaeen. Methylotrophe Archaeen der Gattungen *Methanolobus* (Doerfert et al. 2009; Mochimaru et al. 2009) und *Methanomethylovorans* (Cha et al. 2013; Lomans et al. 1999) machten etwa 6% der gesamten archaellen Biozönose aus (Abbildung 14B, laub-grüne Farben).

Die Isotopenverteilung ist aufgrund der obertägigen Probenahme recht schwer zu bewerten. Die Isotopenverteilung von δ^2 H zeigte eine deutliche Verdunstungssignatur und ergab keinen Hinweis auf biologische Aktivität. Die Verteilung des δ^{13} C-DIC kann ebenfalls eher mit Entgasungsprozessen in Verbindung gebracht werden, die die biologische Aktivität kaschiert haben. Die Verteilung des δ^{13} C-DOC lag im Normbereich für Begleitorganik von Erdgaskomponenten wie Benzol, Aromate usw. und ließ keinen Rückschluss auf signifikanten mikrobiellen Abbau zu. Auch der relativ hohe DOC-Gehalt von 25,3 mg L⁻¹ (Tabelle 8) spricht gegen einen signifikanten Abbau von organischen Stoffen. Daher erlaubt die fluidchemische Analyse des Kondens- bzw. Lagerstättenwassers keine Rückschlüsse auf biologische Aktivität. Die Isotopenverteilung spricht eher für starke Verdunstung (δ^{13} C-DIC, δ^{18} O und δ^2 H in (Tabelle 4)), die auf Entgasungsprozesse zurückzuführen ist, die durch die Probenahme selbst bedingt sein könnten (Kondenswasser, Entnahme über Tage).

Tabelle 8: Übersicht über die Ergebnisse der Isotopenanalyse vom Lagerstätten-/Kondenswasser aus dem Gasspeicher Bierwang. DIC: dissolved inorganic carbon, DOC: dissolved organic carbon.

Isotop	Verteilung
Sauerstoff-18 (δ ¹⁸ Ο)	-2,01 ‰
Deuterium (δ²H)	-25,9 ‰
Deuterium-Exzess	-9,82 ‰
Kohlenstoff-13 (δ ¹³ C-DIC)	18,5 ‰
Kohlenstoff-13 (δ ¹³ C-DOC)	-25,0 ‰

Langzeitversuche unter in-situ-ähnlichen Bedingungen

Für die Langzeitversuche unter *in-situ-*ähnlichen Bedingungen wurde Kondenswasser aus dem Gasspeicher in Bierwang und Referenzgestein (Frankendolomit) verwendet. Die Versuchsansätze wurden zunächst unter atmosphärischem Druck und unter anaeroben Bedingungen angesetzt. Die Anreicherungskultur BiWa-3 wurde als Inokulum für die neue Versuchsreihe ausgewählt, da hier die höchste mikrobielle Aktivität und die höchste Methanbildungsrate (CH₄) beobachtet wurde. Hierfür wurden die Stahlcoupons der neuen Versuchsreihe (Abbildung 15) mit den Abstrichen vom Coupon aus der Anreicherungskultur angeimpft. Zusätzlich wurden die Ansätze BF5 bis BF8 mit 1,2 g L⁻¹ Acetat als zusätzliche Kohlenstoffquelle supplementiert (Tabelle 9). Der Gasraum wurde entweder mit einer H₂- und CO₂-haltigen (He/H₂/N₂/CO₂ = 2,5/6/77,5/14 %) oder mit einer CO₂- und CH₄-haltigen (N₂/CO₂/CH₄ = 70/15/15 %) Gasphase beaufschlagt und bei 40 °C unter atmosphärischem Druck inkubiert. Helium (He) wurde als *Tracer* verwendet, um mögliche Leckagen zu erkennen. Die mikrobielle Aktivität wurde anhand der Änderungen in der Gaszusammensetzung bestimmt.

Tabelle 9: Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck und 40 °C mit natürlichem Lagerstättenwasser vom Standort Bierwang. Die Gasphase wurde entweder mit einer H₂- und CO₂-haltigen (He/H₂/N₂/CO₂ = 2,5/ 6/77,5/14 %) oder mit einer CO₂- und CH₄-haltigen (N₂/CO₂/CH₄ = 70/15/15 %) Atmosphäre beaufschlagt.

Ansatz	Beschreibung	Gasraum
BF1 und BF2	Stahlcoupon + Biofilm	H ₂ - und CO ₂ -haltig
BF3 und BF4	Stahlcoupon + Biofilm	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
BF5 und BF6	Stahlcoupon + Biofilm + 1,2 g L ⁻¹ Acetat	H ₂ - und CO ₂ -haltig
BF7 und BF8	Stahlcoupon + Biofilm + 1,2 g L ⁻¹ Acetat	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
BF9	Stahlcoupon + Biofilm (40 min autoklaviert)	H ₂ - und CO ₂ -haltig
BF10	Stahlcoupon (nicht angeimpft)	H ₂ - und CO ₂ -haltig
BF11	Kein Stahlcoupon	H ₂ - und CO ₂ -haltig
BF12	Stahlcoupon + Biofilm (40 min autoklaviert)	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
BF13	Stahlcoupon (nicht angeimpft)	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
BF14	Kein Stahlcoupon	CO ₂ - und CH ₄ -haltig
BF15	Stahlcoupon + Biofilm	N ₂ Gasphase

Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck

Erste Fluid-Untersuchungen am Standort Bierwang zeigten, dass die jahrelange Nutzung des Standorts als Erdgasspeicher höchstwahrscheinlich zu einem signifikanten SO_4^{2-} -Verbrauch durch die anaerobe Methanoxidation (AOM) geführt hat. Im Einklang damit fand in den Langzeitversuchen mit Reservoirfluid aus Bierwang und Frankendolomit als Referenzgestein keine Präzipitation von Eisensulfiden statt (Abbildung 15), was höchstwahrscheinlich auf die niedrige SO_4^{2-} -Konzentration von ca. 1,3 mg L⁻¹ zurückzuführen ist (Tabelle 4, Seite 26).



Abbildung 15: Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck. Es wurden keine Eisensulfid-Ausfällungen beobachtet.

Die Zusammensetzung des Animpfmaterials, das zur Anreichung von Mikroorganismen und der Biofilmbildung auf dem Coupon verwendet wurde, zeigte, dass die Biozönose des Biofilms der Filterkerzen von den Vertretern der methanogenen Archaea und fermentierenden Bacteria dominiert wurde. Vertreter der Gattung Methanosarcinales, die neben C1-Verbindungen (z. B. Methylamine), Acetat sowie Kohlendioxid (CO_2) und Wasserstoff (H_2) zu Methan (CH_4) umwandeln können (Hutten et al. 1980), waren mit über 20 % sehr abundant. Korrespondierend dazu wurde in den Langzeitversuchen mit einer H₂- und CO₂-haltigen Gasphase CH₄ gebildet. Nach einer kurzfristigen Zunahme von Wasserstoff aufgrund der chemischen Korrosion kam es zu einem raschen Verbrauch von H₂ und CO₂ und einer Zunahme von CH₄. Die Methanisierung fand statt, solange eine Kohlenstoffquelle in Form von CO₂ oder Acetat zur Verfügung stand (Abbildung 16, BF1 und BF5). Lag neben CO₂ eine zusätzliche Kohlenstoffquelle in Form von Acetat (1,2 g L⁻¹) vor, wurde eine signifikant höhere CH₄-Menge freigesetzt (ca. 30 %-Vol. vs. 5 %-Vol.). Ansätze, die mit einem aktiven Biofilm aus der Anreicherungskultur BiWa-3 inokuliert wurden, wiesen im Vergleich zum unbeimpften Ansatz BF10 eine leicht verkürzte lag-Phase (ca. 7 vs.14 Tage) auf (Abbildung 16, BF10). Die mikrobielle Aktivität war von der Anwesenheit eines Stahlcoupons abhängig. In Abwesenheit eines Coupons wurde weder H₂ verbraucht noch CH₄ gebildet. Die anfängliche CO₂-Abnahme im Ansatz BF11 wurde vermutlich durch das Lösen vom gasförmigen CO₂ im Fluid hervorgerufen (Abbildung 16, BF11).

Die Ansätze mit einer CO₂- und CH₄-haltigen Gasphase zeigten eine ähnliche mikrobielle Aktivität. Die Methanfreisetzung fand statt, solange eine Kohlenstoffquelle in Form von CO₂ (Carbonat) oder Acetat zur Verfügung stand (Abbildung 17, BF3 und BF7). Für die Aktivität hydrogenotropher *Archaea* ist die Verfügbarkeit von Wasserstoff essentiell. Dieser wurde durch chemische Korrosion des Stahlcoupons gebildet und rasch mit CO₂ methanisiert (Abbildung 17, BF3 und BF7). Dementsprechend war auch hier die mikrobielle Aktivität von der Anwesenheit eines Stahlcoupons und der damit verbundenen Wasserstoffbildung in Folge chemischer Korrosion abhängig. Die anfängliche CO₂-Abnahme im Ansatz BF14 (ohne Coupon und ohne Inokulum) lässt sich durch das Lösen vom gasförmigen CO₂ im Fluid erklären (Abbildung 17, BF14). Ansätze, die mit einem aktiven Biofilm aus der Anreicherungskultur BiWa-3 inokuliert wurden, wiesen eine höhere mikrobielle Aktivität im Vergleich zum unbeimpften Ansatz BF13 auf, in dem sich zunächst eine aktive mikrobielle Gemeinschaft etablieren musste (Abbildung 17, BF13). Folglich wurde durch das Animpfen die Adaptionsphase und damit die erforderliche Versuchsdauer verkürzt.



Abbildung 16: Mikrobielle Aktivität in Versuchsansätzen mit einer H_2 - und CO_2 -reichen Gasphase. Die Ansätze BF2, BF6, BF10 und BF11 wurden mit einer $He/H_2/N_2/CO_2 = 2,5/6/77,5/14$ %-Gasphase beaufschlagt und unter atmosphärischem Druck bei 40 °C inkubiert. In Abwesenheit eines Coupons und Inokulums wurde keine mikrobielle Aktivität beobachtet (BF11). Nach dem Gastausch am Tag 301 (gestrichelte Linie) setzten sich die beobachteten mikrobiellen Prozesse fort.



Abbildung 17: Mikrobielle Aktivität in Versuchsansätzen mit einer CO_2 - und CH_4 -reichen Gasphase. Die Ansätze BF4, BF8, BF13 und BF14 wurden mit einer $N_2/CO_2/CH_4 = 70/15/15$ %-Gasphase beaufschlagt und unter atmosphärischem Druck bei 40 °C inkubiert. Die mikrobielle Aktivität war von der Anwesenheit eines Stahlcoupons abhängig (BF14). Nach dem Gastausch am Tag 301 (gestrichelte Linie) setzten sich die beobachteten mikrobiellen Prozesse fort.

Um den Effekt einer zusätzlichen Kohlenstoffquelle wie CO₂ oder Acetat auf die mikrobielle Methanbildungsrate zu untersuchen, wurde der Kontrollansatz BF15 mit einer N₂-Gasphase angesetzt. In Abwesenheit einer zusätzlichen Kohlenstoffquelle war die Methanfreisetzung stark verlangsamt. Der durch Korrosion gebildete H₂ wurde rasch mit CO₂, das von Fermentierern gebildet worden war oder aus dem Fluid ausgaste, zu CH₄ (Konzentration in der Gasphase ca. 1 %-Vol.) umgesetzt (Abbildung 18, BF15). Die Mikrobiomanalyse des Animpfmaterials zeigte, dass die Biozönose des Biofilms von Vertretern der fermentierenden Bakterien, insbesondere von der Gattung *Pelobacter*, dominiert wurde. Vertreter dieser Gattung oxidieren kurzkettige Alkohole (z. B. Glycerol, Propanol und Butanol) oder kurzkettige Säuren (z. B. Formiat) zu CO₂. Die dabei anfallenden Elektronen werden entweder auf H₂ oder Schwefel übertragen (Aklujkar et al. 2012; Imachi et al. 2007).



Abbildung 18: Mikrobielle Aktivität im Kontrollansatz mit einer N₂-Gasphase. Der Ansatz BF15 wurde mit einer N₂-Gasphase beaufschlagt und unter atmosphärischem Druck bei 40 °C inkubiert. Die mikrobielle Aktivität war gegenüber den Ansätzen mit einer zusätzlichen C-Quelle stark reduziert.

Um zu untersuchen, ob die beobachteten Änderungen in der Zusammensetzung der Gasphase auf mikrobielle Aktivität zurückgeführt werden können, wurden abiotische Kontrollen sowohl für die H₂und CO₂-haltigen (Abbildung 19, BF9) als auch für die CO₂- und CH₄-haltigen Versuchsansätze (Abbildung 19, BF12) mitgeführt. Die Ansätze wurden autoklaviert, um evtl. vorhandene Mikroorganismen abzutöten. Abgesehen von der initialen Abnahme der CO₂-Konzentration wurde in den abiotischen Kontrollen in den ersten 150 Tagen keine Änderung in der Gaszusammensetzung beobachtet. Danach wurde insbesondere in dem Ansatz, der eine H₂- und CO₂-haltige Atmosphäre enthielt (Abbildung 19, BF9), vermehrt H₂ durch chemische Korrosion freigesetzt. In dem Ansatz, der mit einer CO₂- und CH₄-haltigen Gasphase versetzt wurde, war zwar die Freisetzungsrate von H₂ geringer (Abbildung 19, BF12), eine Methanisierung wurde jedoch nicht beobachtet. Diese Beobachtungen belegen, dass es sich bei der CH₄-Freisetzung in experimentellen Ansätzen (Abbildung 16, BF2, BF6 und BF10; Abbildung 17, BF4 und BF8) um eine biogene Methanbildung handelte.



Abbildung 19: Mikrobielle Aktivität in abiotischen Kontrollen zu den Versuchsansätzen mit einer H_2 - und CO_2 -reichen (BF9) bzw. CO_2 - und CH_4 -reichen (BF12) Gasphase. Die Ansätze BF9 und BF12 wurden 40 min autoklaviert, mit dem entsprechenden Gas beaufschlagt, und anschließend unter atmosphärischem Druck bei 40 °C inkubiert. In BF9 und BF12 kam es zur Freisetzung von H_2 aufgrund der chemischen Korrosionsprozesse. Die Methanisierung von CO_2 wurde nicht beobachtet. Nach dem Gastausch am Tag 301 (gestrichelte Linie) setzten sich die beobachteten mikrobiellen Prozesse fort.
Die Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck wurden am Tag 342 beendet und die mikrobiellen Gemeinschaften im Fluid und auf den Oberflächen des Coupons und des Gesteins mittels Mikrobiomanalyse (*INVIEW Microbiome Profiling 3.0; Eurofins Genomics Germany* GmbH) bestimmt. Die fluidchemische Analyse des Lagerstättenwassers sowie der Ansätze 280 bzw. 342 Tage nach Versuchsanfang erfolgte mittels IC. Das Lagerstättenwasser enthielt neben hohen Chloridkonzentrationen von ca. 8,5 g L⁻¹ auch Bromid (ca. 70 mg L⁻¹) und Nitrat (ca. 4 mg L⁻¹) (Tabelle 10). Da es sich bei dem Frankendolomit um eine beständige Gesteinsart handelt, wurden aus dem Gestein kaum Mineralien herausgelöst. Dabei wird der Ionenaustausch mit dem umliegenden Medium durch die unterschiedlichen Ionengrößen von Calcium und Magnesium verhindert.

	Dauer	Chlorid	Acetat	Bromid	Nitrat	Sulfat	Korrosionsrate	
Ansatz	[d]	[g L ⁻¹]		[mg L	[g a ⁻¹]	[mm a ⁻¹]		
Fluid	0	8,5	14,6	70,5	3,8	7,3	-	-
BF1	280	8,5	19,8	74,7	3,4	6,9	-	-
BF2	342	8,5	29,3	69,3	3,7	7,2	0,149	0,032
BF3	280	8,6	14,4	71,9	2,9	2,1	-	-
BF4	342	8,5	30,9	69,4	3,0	3,4	0,126	0,027
BF5	280	8,6	265,1	71,4	4,9	0,5	-	-
BF6	342	8,2	13,8	68,7	2,9	1,7	0,096	0,020
BF7	280	8,6	1741,1	71,4	3,1	6,7	-	-
BF8	342	8,1	1619,1	67,8	3,5	7,0	0,107	0,023
BF9	342	8,5	32,8	71,6	5,6	20,3	0,088	0,019
BF10	342	8,5	23,4	72,2	4,2	19,1	0,127	0,027
BF11	342	8,5	45,3	67,7	3,3	21,0	-	-
BF12	342	8,5	31,1	71,6	5,4	14,0	0,023	0,006
BF13	342	8,5	21,1	70,6	3,7	20,2	0,021	0,005
BF14	342	8,5	64,8	71,3	3,9	19,3	-	-
BF15	342	8,5	5,5	71,2	3,6	11,9	0,057	0,014

Tabelle 10: Chemische Zusammensetzung der Fluide und die Korrosionsraten der Langzeitversuchsreihe (BF). Die Ansätze setzten sich aus dem natürlichen Fluid (Standort Bierwang) und dem Referenzgestein Frankendolomit zusammen. Die Ionenkonzentrationen wurden mittels Ionenchromatographie (IC) bestimmt.

Die fluidchemische Analyse der Ansätze zeigte, dass sich geringe Mengen von Sulfat aus dem Gestein herausgelöst haben, was zu einer Akkumulation von Sulfat in den mikrobiell inaktiven Ansätzen (BF9– 14) führte (Tabelle 10). In den mikrobiell aktiven Ansätzen (BF1–8 sowie BF15) wurde das Sulfat dagegen höchstwahrscheinlich verbraucht (Tabelle 10). Auffällig ist auch, dass in den Ansätzen mit einer H₂/CO₂-haltigen Gasphase (BF5 und BF6) das supplementierte Acetat verbraucht wurde, während in den Ansätzen mit einer CO₂/CH₄-haltigen Gasphase (BF7 und BF8) Acetat gebildet wurde. Sowohl die Änderungen in der Gasphase als auch in der Acetatkonzentration lassen vermuten, dass die homoacetogenen *Bacteria* in der Biozönose der Langzeitversuche mit einer CH₄-haltigen Atmosphäre besonders aktiv waren, während methanogene Archaeen die mikrobielle Gemeinschaft der H₂-haltigen Versuche dominierten.

Langzeitversuche unter Hochdruck

Um den Einfluss des Drucks auf die mikrobielle Aktivität und die Zusammensetzung der mikrobiellen Lebensgemeinschaften zu untersuchen, wurden die Ansätze BF1, BF3, BF5 und BF7 am Tag 280 unter anoxischen Bedingungen in Hochdruckzellen überführt. Davor wurde ein Teil der Biofilme, die sich auf den Coupons etabliert haben, mit einem Wattestäbchen abgenommen. Zusätzlich wurden Proben vom Fluid für die fluidchemische Analyse (Tabelle 10) und vom Gestein für die Mikrobiomanalyse genommen. Die Ansätze BF5 und BF7 wurden vor dem Verschließen der Hochdruckzellen erneut mit 1,2 g L⁻¹ Acetat versetzt. Die Ansätze BF1 und BF5 wurden mit einer H₂- und CO₂-haltigen Gasphase beaufschlagt ($He/H_2/N_2/CO_2 = 2,5/6/77,5/14\%$), während BF3 und BF7 eine CO_2/CH_4 -haltige $(N_2/CO_2/CH_4 = 70/15/15\%)$ Atmosphäre erhielten. Alle Ansätze wurden bis zu einem finalen Druck von ca. 41 bar begast und anschließend weiter bei 40 °C inkubiert. Die mikrobielle Aktivität wurde kontinuierlich anhand der Änderungen in der Gaszusammensetzung verfolgt. Der Hochdruckansatz BF7 ließ sich trotz wiederholter Versuche nicht abdichten, weshalb dieser Ansatz nicht weiterverfolgt wurde.

Unter Hochdruckbedingungen wurde lediglich in Anwesenheit von Acetat als Kohlenstoffquelle Methan gebildet (Abbildung 20, BF5), was auf die Aktivität von acetoklastischen Methanogenen schließen lässt. Die Methanisierung unter Hochdruckbedingungen verlief im Vergleich zu den Ansätzen unter atmosphärischem Druck wesentlich langsamer. In Abwesenheit von Acetat als zusätzlicher Kohlenstoffquelle wurde auch nach 70-tägiger Inkubation keine signifikante Methanisierung von CO₂ beobachtet (Abbildung 20, BF1 und BF3). Das lässt vermuten, dass die Aktivität der hydrogenotrophen Methanogene unter Hochdruck im Vergleich zu atmosphärischem Druck herabgesetzt war. In den Ansätzen BF1 und BF3 fand eventuell direkt nach dem Überführen in die Hochdruckzellen eine geringfügige Methanfreisetzung statt, an die sich ein leichter Methanverbrauch anschloss. Wenn unter Hochdruckbedingungen geringe Mengen an Sulfat aus dem Gestein herausgelöst wurden, sodass die AOM einsetzen konnte, besteht die Wahrscheinlichkeit, dass sich die Methanfreisetzung und der Methanverbrauch die Waage hielten. Ob dies tatsächlich der Fall ist, lässt sich anhand der Analyse der Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaft beurteilen.







Abbildung 20: Mikrobielle Aktivität in Versuchsansätzen unter atmosphärischem Druck und unter Hochdruck. Die BF1 und BF5 Ansätze wurden mit einer He/H₂/N₂/CO₂ = 2,5/6/77,5/14 %-Gasphase beaufschlagt. Der Ansatz BF3 wurde mit einer $N_2/CO_2/CH_4 = 70/15/15$ %-Gasphase beaufschlagt. Alle Ansätze wurden bei 40 °C unter atmosphärischem Druck bzw. ab Tag 280 unter Hochdruck inkubiert (grau markierter Bereich). Nach dem Überführen der Ansätze in die Hochdruckzellen setzte sich die Methanfreisetzung nur in Anwesenheit von Acetat als zusätzlicher Kohlenstoffquelle fort. In Abwesenheit von Acetat wurde keine Methanfreisetzung beobachtet.

300

350

100

150 250

Zeit [d]

Hochdruck 41 bar

1.4.5 Ergebnisse der Charakterisierung von Fluidproben vom CO₂-Speicher in Ketzin

Die Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaft in der Injektionsbohrung Ktzi 201 des CO₂-Speichers in Ketzin wurde sowohl vor Beginn der Injektion als auch während der Injektion über einen Zeitraum von insgesamt sieben Jahren charakterisiert. Innerhalb von SUBI wurden Proben aus diesem Zeitraum (Lagerung bei -20 bis -70 °C) mit Hilfe der Mikrobiomanalyse detaillierter charakterisiert als es mit dem zuvor genutzten genetischen Fingerprinting Verfahren möglich gewesen war. Die Untersuchung zeigte, dass sich sowohl die Zusammensetzung der bakteriellen Gemeinschaft als auch die der archaeellen Gemeinschaft im Verlauf der CO₂-Injektion signifikant änderte.

Zum Bohren von Ktzi 201 war eine wasserbasierte Bohrspülung verwendet worden, die CaCO₃, Betonit und organische Polymere v. a. Carboxymethylcellulose (CMC) enthielt und die aus technischen Gründen vergleichsweise lange im Bohrloch verblieben war. Vor der CO₂-Injektion wurden im Juli 2007 versucht, die Bohrung im Zuge eines Pumptests zu reinigen und dabei die organische Bohrspülung zu entfernen, da die Injektionsbohrung zunächst eine viel zu geringe Injektivität aufwies. Das Fluid vom Pumpversuch an der Ktzi 201 und Tiefenproben aus der Bohrung wurden molekularbiologisch untersucht. Die Mikrobiomanalyse des am 01.07.2007 gewonnenen Fluids vom Pumpversuch zeigte eine sehr hohe mikrobielle Diversität und Abundanz der fakultativ anaeroben Gattungen *Halolactibacillus, Halomonas, Ralstonia* und *Sanguibacter* (Abbildung 21, violette Farbabstufungen). Außerdem wurde auch eine bisher nur als obligat aerob bekannte Gattung *Natronobacillus* (Abbildung 21, orange) identifiziert.

Auch wenn die Bohrspülung mit Biozid versetzt wurde, kann nicht ausgeschlossen werden, dass einerseits mit der Bohrspülung resistente Sporen aerober und fakultativ anaerober Mikroorganismen eingebracht worden waren und andererseits durch den Bohrprozess selbst Mikroorganismen von der Erdoberfläche die Bohrung kontaminiert haben. Des Weiteren könnten sich die identifizierten Mikroorganismen durch die Verdünnung der Bohrspülung mit dem Reservoirfluid und die damit verbundene Abnahme der Biozidkonzentration aus dem Fluid im Bohrloch angereichert haben. Nach einer intensiven Reinigung der Bohrung mit Hilfe eines Stickstofflifts (Mammutpumpe, Probenahme am 21.09.2007) dominierten obligat anaerobe Fermentierer (Abbildung 21, blaue Farbabstufungen), insbesondere die Gattung *Halanaerocella*, die Biozönose. Anfänglich hatten die Fermentierer aufgrund der hohen Konzentration an organischen Substanzen und der anaeroben Bedingungen im Bohrloch gegenüber anderen Gattungen einen Wachstumsvorteil.

Die Gesamthäufigkeit (Abundanz) fermentativer Bakterien nahm aufgrund der abnehmenden Konzentration organischer Substanzen im Zuge des Abbaus allmählich ab. Korrespondierend dazu nahm die Häufigkeit von SRB (Abbildung 21, rote Farbabstufungen) bis 2014 langsam zu. Im Juni 2008 wurde mit der Injektion von überkritischem CO₂ begonnen. Diese hatte keinen signifikanten Einfluss auf die Häufigkeit oder Diversität der SRB, führte aber zu einer erhöhten Diversität bei den Fermentierern. Die SRB-Konsortien wurden stark von der Gattung *Desulfallas* dominiert. Andere SRB-Gattungen wie *Desulfotomaculum* und *Desulfofarcimen* waren weniger abundant.



Abbildung 21: Langzeit-Monitoring der Zusammensetzung der bakteriellen Gemeinschaft in der Injektionsbohrung Ktzi 201. Anfänglich dominierten die fakultativen Anaerobier (violette Farben) und obligat anaeroben Fermentierer (blaue Farben) aufgrund des hohen Organikgehalts die Bakteriengemeinschaft. Infolge der Abnahme organischer Substanzen nahm die Häufigkeit der Fermentierer ab und die der SRB zu. Die SRB-Konsortien wurden insbesondere von Desulfallas spp. dominiert.

Die Zusammensetzung der archaeellen Gemeinschaft in Ktzi 201 hat sich während des siebenjährigen Langzeit-Monitorings ebenfalls stark verändert. Anfänglich wurde die archaeelle Biozönose von dem methylotrophen Methanogen der Gattung *Methanolobus* (Mochimaru et al. 2009) dominiert (Abbildung 22, Probenahme 01.07.2007). Innerhalb der ersten Monate verlagerte sich die Zusammensetzung der Archaeen-Gemeinschaft zu der mixotrophen Gattung *Methanosarcina* (Hutten et al. 1980; Müller et al. 1986) (Abbildung 22, Probenahme 26.02.2008). Korrespondierend zur Abnahme der Fermentierer nahm auch die Häufigkeit von *Methanosarcina* ab. Stattdessen nahm die Abundanz der hydrogenotrophen Gattungen *Methanoculleus* (Cheng et al. 2008; Tian et al. 2010) und *Methanobacterium* (Battumur et al. 2016) korrespondierend zur zunehmenden, relativen Abundanz der SRB stark zu (Abbildung 22, ab 2010).



Abbildung 22: Langzeit-Monitoring der Zusammensetzung der archaeellen Gemeinschaft in der Injektionsbohrung Ktzi 201. Nach Eintrag organuischer Verbindungen wurde die Biozönose von der methylotrophen Gattung Methanolobus dominiert, welche nach wenigen Monaten, zu Beginn der Exposition mit überkritischem CO₂, durch die mixotrophe Gattung Methanosarcina abgelöst wurde. Seit 2010 wurde die archaeelle Gemeinschaft von der hydrogenotrophen Gattung Methanoculleus dominiert.

Neben den Veränderungen der mikrobiellen Biozönose in Folge der Exposition mit überkritischem CO₂ dürfte auch die Abnahme der Konzentration an organischen Verbindungen im Zuge des Abbaus durch Fermentation, Sulfatreduktion und Methanogenese im Verlauf von fünf Jahren die Änderungen in der Dominanz der einzelnen Vertreter beeinflusst haben. Beispielsweise ist bekannt, dass die Gattung *Methanosarcina* bei hohen Konzentrationen an organischem Kohlenstoff die methanogene Gemeinschaft dominiert, während *Methanoculleus* besser an niedrigere Konzentrationen angepasst ist.

Die abnehmende Abundanz der Fermentierer in Verbindung mit einer zunehmenden Dominanz von Sulfat-reduzierenden Bacteria (SRB) und auch die Änderungen in der Zusammensetzung der methanogenen Vertreter weisen auf eine aktive mikrobielle Gemeinschaft hin, die sich im Verlauf der Jahre an die veränderten Umweltbedingungen anpasst. Auch nach fünf Jahren Betrieb des Pilotspeichers und der damit verbundenen Exposition mit überkritischem CO₂ war in den hochsalinen Bohrfluiden eine stoffwechselaktive Biozönose aus SRB und Methanogenen vorhanden, die offensichtlich immer noch erheblich durch den Eintrag von organischen Verbindungen im Zuge des Bohrprozesses (Well drilling) und dem Ausbau der Bohrungen (Well completion) beeinflusst war. Die in der Bohrspülung enthaltenen organischen Polymere wurden von Fermentierern zu organischen Säuren abgebaut, die wiederum von SRB und Methanogenen als eine Energie- und Kohlenstoffquelle genutzt wurden. Sowohl SRB als auch methanogene Archaea sind dafür bekannt, dass sie an mikrobiell induzierter Korrosion von metallischen Verbindungen beteiligt sind. Generell lässt sich daraus ableiten, dass auch Jahre nach dem Eintrag von Organik in eine Bohrung die Korrosion an metallischen Komponenten sowie die Alteration von Dichtungsmaterialien gefördert werden kann. Und dies kann selbst bei sehr widrigen Umweltbedingungen wie der Exposition mit überkritischem CO2 und extrem hoher Salinität der Fall sein.

1.4.6 Ergebnisse Standort Neubrandenburg (Geothermieanlage)

Um zu untersuchen, welchen Einfluss die Temperatur in Verbindung mit der Gasphase auf die mikrobielle Aktivität und die Korrosionsrate hat, wurden Langzeitversuche (Tabelle 11) unter atmosphärischem Druck mit Lagerstättenwasser aus Neubrandenburg angesetzt. In allen Ansätzen, die einen beimpften Coupon enthielten, bildeten sich schwarze eisensulfidische Ausfällungen (Abbildung 23, Abbildung 24). Die Präzipitate waren am stärksten in den 40 °C-Ansätzen ausgeprägt, mit zunehmender Inkubationstemperatur nahmen die Ausfällungen ab.

Tabelle 11: Langzeitver	suche unter atmo	osphärischem Dr	uck bei 40 °C,	60 °C und 80	°C mit natürliche	em Fluid aus der
Geothermieanlage vom	Standort Neubr	andenburg. Die	Gasphase wi	urde entweder	mit einer H ₂ -	und CO ₂ -haltigen
$(He/H_2/N_2/CO_2 = 3/8/72)$	/17 %) oder mit eii	ner CO ₂ - und CH ₄	-haltigen (N ₂ /C	CO ₂ /CH ₄ = 75/13	3/12 %) Atmosphä	re beaufschlagt.

Ansatz	Beschreibung	Gasraum	
NB40_1 und NB40_2	Stahlcoupon + Biofilm, 40 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig	
NB40_3 und NB40_4	Stahlcoupon + Biofilm, 40 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig	
NB60_1 und NB60_2	Stahlcoupon + Biofilm, 60 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig	
NB60_3 und NB60_4	Stahlcoupon + Biofilm, 60 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig	
NB80_1 und NB80_2	Stahlcoupon + Biofilm, 80 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig	
NB80_4 und NB80_4	Stahlcoupon + Biofilm, 80 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig	
NB40_K1	Kein Stahlcoupon, 40 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig	
NB60_K1	Kein Stahlcoupon, 60 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig	
NB80_K1	Kein Stahlcoupon, 80 °C	H ₂ - und CO ₂ -haltig	
NB40_K2	Kein Stahlcoupon, 40 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig	
NB60_K2	Kein Stahlcoupon, 60 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig	
NB80_K2	Kein Stahlcoupon, 80 °C	CO ₂ - und CH ₄ -haltig	

NB40_K1 NB40_1 NB40_2 NB60_K1 NB60_1 NB60_2 NB80_K1 NB80_1 NB80_1



Abbildung 23: Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck mit einer H_{2} - und CO_2 -haltigen Gasphase. Die dargestellten Ansätze wurden bei 40 °C, 60 °C und 80 °C inkubiert.

NB40_K2 NB40_3 NB40_4 NB60_K2 NB60_3 NB60_4 NB80_K2 NB80_3 NB80_4



Abbildung 24: Langzeitversuche unter atmosphärischem Druck mit einer CH₄- und CO₂-haltigen Gasphase. Die dargestellten Ansätze wurden bei 40 °C, 60 °C und 80 °C inkubiert.

1.4.6.1 Temperaturversuche mit einer H₂- und CO₂-haltigen Gasphase

In den Langzeitversuchen mit einer H_2 - und CO_2 -haltigen Gasphase, die bei 40 °C inkubiert wurden, wurde CO_2 und H_2 verbraucht (Abbildung 25, NB40_1).



Abbildung 25: Mikrobielle Aktivität im Versuchs- und Kontrollansatz, der bei 40 °C und atmosphärischem Druck inkubiert wurde und mit einer H₂- und CO₂-reichen Gasphase (He/H₂/N₂/CO₂ = 3/8/72/17 %) beaufschlagt wurde.

Mit steigender Temperatur wurde in den Versuchsansätzen zwar CO₂ weiterhin verbraucht, jedoch wurde kein H₂-Verbrauch mehr beobachtet. Stattdessen kam es mit steigender Temperatur zu einer steigenden Bildung von H₂. Wahrscheinlich überwogen mit steigender Temperatur die H₂-bildenden Prozesse (Korrosion von Stahl) die H₂-verbrauchenden (Acetogenese und Sulfatreduktion) (Abbildung 26, NB60_2 und NB80_2).

In allen Kontrollansätzen kam es zu einer initialen Abnahme von CO₂, die eventuell durch das Lösen des Gases im Fluid verursacht wurde (Abbildung 25, NB40_K1 und Abbildung 26, NB60_K1 und NB80_K1). Außerdem wurde in allen Kontrollansätzen analog zum Versuchsansatz NB40_1 eine H₂-Abnahme beobachtet (Abbildung 25, NB40_K1 und Abbildung 26, NB60_K1 und NB80_K1). In dem Kontrollansatz, der bei 80 °C inkubiert wurde, wurde H₂ wesentlich langsamer verbraucht (Abbildung 26, NB80_K1).

In keinem der Versuchs- bzw. Kontrollansätze wurde eine Methanisierung von CO₂ beobachtet. Vermutlich inhibierten sowohl die hohe Salinität des Fluids als auch die hohe Sulfatkonzentration die Methanogenese (Wilms et al. 2006; Wilms et al. 2007).



Abbildung 26: Mikrobielle Aktivität in den Versuchs- und Kontrollansätzen, die bei 40 °C bzw. 60 °C und atmosphärischem Druck inkubiert wurden und mit einer H_{2^-} und CO₂-reichen Gasphase (He/H₂/N₂/CO₂ = 3/8/72/17 %) beaufschlagt wurden.

1.4.6.2 Temperaturversuche mit einer CO₂- und CH₄-haltigen Gasphase

Um zu überprüfen, ob sich hochsaline und sulfatreiche Standorte wie das Norddeutsche Becken für die unterirdische Speicherung von Methan eignen, wurden Langzeitversuche im Labormaßstab mit einer CH₄- und CO₂-haltigen Gasphase bei 40 °C, 60 °C und 80 °C, unter atmosphärischem Druck angesetzt (Abbildung 27, Abbildung 28).



Abbildung 27: Mikrobielle Aktivität in den Versuchs- und Kontrollansätzen, die bei 40 °C bzw. 60 °C und atmosphärischem Druck inkubiert wurden und mit einer CH₄- und CO₂-reichen Gasphase ($N_2/CO_2/CH_4 = 75/13/12$ %) beaufschlagt wurden.

In den Ansätzen, die bei 40 °C bzw. bei 60 °C inkubiert wurden, wurde CO_2 verbraucht (Abbildung 27). Der durch Korrosion am Stahlcoupon freigesetzte H_2 wurde in den 60 °C-Ansätzen nach ca. 37 Tagen abgebaut (Abbildung 27). In den Ansätzen, die bei 40 °C inkubiert wurden, wurde kein H_2 detektiert, weil er direkt nach der Bildung wieder verstoffwechselt worden ist. Der Methangehalt blieb in allen Ansätzen etwa konstant (Abbildung 27, 40 °C und 60 °C Ansätze; Abbildung 28, 80 °C Ansätze). In den Ansätzen, die bei 80 °C inkubiert wurden, wurde ebenfalls CO_2 verbraucht, während sich Wasserstoff akkumulierte (Abbildung 28). Hier überwogen vermutlich die Korrosionsprozesse, die H_2 freisetzen, den H_2 -Verbrauch durch Acetogenese und Sulfatreduktion.



Abbildung 28: Mikrobielle Aktivität im Versuchs- und Kontrollansatz, der bei 80 °C und atmosphärischem Druck inkubiert wurde und mit einer CH_4 - und CO_2 -reichen Gasphase ($N_2/CO_2/CH_4 = 75/13/12$ %) beaufschlagt wurde.

In allen Kontrollansätzen kam es zu einer geringfügigen Abnahme von CO₂ (Abbildung 27, NB40_K2 und NB60_K2, Abbildung 28, NB80_K2), die vermutlich darin begründet ist, dass ein Teil des CO₂ in Lösung geht. In den Kontrollansätzen wurden keine Änderungen in der H₂- und CH₄-Konzentration festgestellt.

1.4.6.3 Fluidchemie und Korrosionsrate

Die Langzeitversuche NB40_2, NB60_1 und NB80_1, die eine H₂- und CO₂-haltige Gasphase enthielten, sowie NB40_3, NB60_4 und NB80_3 mit einer CO₂- und CH₄-haltigen Atmosphäre wurden am Tag 100 beendet. Die mikrobiellen Gemeinschaften wurden aus dem Fluid und von den Couponoberflächen gewonnen, anschließend extrahiert und die jeweilige Zusammensetzung der Biozönose mittels Mikrobiomanalyse (INVIEW Microbiome Profiling 3.0; Eurofins Genomics Germany GmbH) bestimmt. Zusätzlich wurde eine fluidchemische Analyse des Lagerstättenwassers aller Ansätze 100 Tage nach Versuchsanfang mittels IC vorgenommen (Tabelle 12). Da sich die Ionenzusammensetzung außer für Sulfat nicht verändert hat, wurde auf die Darstellung der anderen Ionen verzichtet und der Fokus auf die Korrosionsraten in Verbindung mit der Sulfatkonzentration gelegt.

Tabelle 12: Durchschnittliche Sulfatkonzentration und Korrosionsraten im Ausgangsfluid vom Standort Neubrandenburg und der Langzeitansätze. Die Ionenkonzentrationen wurden mittels Ionenchromatographie (IC) bestimmt.

Ansatz	Gas	Dauer [d]	Sulfat [mg L ⁻¹]	Korrosionsrate [mm a ⁻¹]
Fluid		0	950 ± 29	-
NB40_1 und NB40_2	50	100	516 ± 47	0,122
NB40_K1	H ₂ - und CO ₂ -halti	100	904 ± 11	-
NB60_1 und NB_2		100	913 ± 102	0,060
NB60_K1		100	863 ± 2	-
NB80_1 und NB80_2		100	966 ± 46	0,080
NB80_K1		100	893 ± 21	-
NB40_3 und NB40_4	<u>.</u>	100	695 ± 102	0,073
NB40_K2	halt	100	928 ± 20	-
NB60_3 und NB60_4	ind CH ₄ -	100	800 ± 19	0,056
NB60_K2		100	941 ± 43	-
NB80_3 und NB80_4) ₂ - u	100	952 ± 59	0,071
NB80_K2		100	927 ± 25	-

Die fluidchemische Analyse ergab, dass die Sulfatreduktion von der Anwesenheit eines Coupons abhängig war. In den Kontrollansätzen, die keinen Coupon enthielten, wurde kein bzw. kaum Sulfat verbraucht. Es ist davon auszugehen, dass der Verbrauch von Sulfat durch die SRB verursacht wurde, die auf die Anwesenheit eines Stahlcoupons angewiesen sind. Der stärkste Sulfatverbrauch in Verbindung mit der höchsten Korrosionsrate von 0,122 mm Jahr⁻¹ wurde in den 40 °C-Ansätzen mit einer H₂- und CO₂-haltigen Atmosphäre ermittelt. In den analogen Ansätzen mit einer CO₂- und CH₄- haltigen Gasphase wurde der zweithöchste Sulfatverbrauch beobachtet. Die Korrosionsrate war zwar mit 0,073 mm Jahr⁻¹ recht hoch, lag aber unterhalb der zweithöchsten Korrosionsrate von 0,080 mm Jahr⁻¹, die durch die chemische Korrosion in dem 80 °C-Ansatz NB80_1, welcher eine H₂- und CO₂-haltige Gasphase enthielt, ermittelt wurde. Die Sulfatkonzentration in den 80 °C-Ansätzen hatte sich gegenüber dem Ausgangsfluid nicht verändert. Es ist davon auszugehen, dass die mikrobielle Aktivität der SRB bei 80 °C fast vollständig zum Erliegen gekommen ist. Die niedrigsten Korrosionsraten von ca. 0,06 mm Jahr⁻¹ wurden in den 60 °C-Ansätzen ermittelt. Jedoch wurde bereits bei 60 °C die mikrobielle Sulfatreduktion durch SRB größtenteils inhibiert, sodass in den Ansätzen NB60 recht wenig Sulfat verbraucht wurde.

1.4.6.4 Molekularbiologische Untersuchungen: Quantifizierung der Gesamtbakterien und Sulfatreduzierer

Korrespondierend zu der Fluidanalyse und den mikrobiellen Prozessen, die mittels GC beobachtet wurden, zeigt die Quantifizierung der Bakterien und der SRB mittels qPCR, dass unabhängig davon, wie die Gasphase zusammengesetzt war, die Abundanz der Bakterien und der Anteil der SRB-Konsortien im Biofilm auf dem Coupon mit zunehmender Temperatur abnimmt (Abbildung 29). Dies steht im Einklang mit den fluidchemischen Analysen und den Korrosionsraten (Tabelle 12). Durch die qPCR konnte bestätigt werden, dass die recht hohen Korrosionsraten bei 80 °C nicht durch mikrobielle Prozesse, sondern höchstwahrscheinlich chemisch verursacht wurden, während die Korrosion bei 40 °C mikrobiellen Ursprungs ist. Die höhere Korrosionsrate des Coupons aus dem Ansatz mit einer H₂- und CO₂-haltigen Gasphase lässt sich höchstwahrscheinlich durch die stärkere mikrobielle Besiedlung des Coupons, insbesondere durch SRB, erklären.



Abbildung 29: Quantifizierung der bakteriellen Gemeinschaft und der Sulfatreduzierer (SRB) in den Biofilmen, die sich auf den Coupons etabliert haben, mittels real-time quantitative Polymerasekettenreaktion (qPCR). Die Quantifizierung der Bakterien erfolgte unter Verwendung universeller 16S rRNA-Primer. Zur Quantifizierung der SRB wurden universelle dsrB-Primer verwendet.

Eine ähnliche Entwicklung wurde im Fluid beobachtet (Abbildung 30). Hier nahm die Gesamtzahl der Bakterien und SRB mit steigender Temperatur tendenziell ab. Der leichte Anstieg der Kopienzahlen zwischen 40 °C und 60 °C in den H₂- und CO₂-haltigen Ansätzen ist eher auf eine Messungenauigkeit zurückzuführen als auf eine tatsächliche Zunahme der Bakterienzahl.



Abbildung 30: Quantifizierung der bakteriellen Gemeinschaft und der Sulfatreduzierer (SRB) in den Fluiden aus der Temperaturversuchsreihe mittels real-time quantitative Polymerasekettenreaktion (qPCR). Die Quantifizierung der Bakterien erfolgte unter Verwendung universeller 16S rRNA-Primer. Zur Quantifizierung der SRB wurden universelle dsrB-Primer verwendet.

1.4.7 Zusammenfassung

Im Rahmen des vorliegenden Berichtes wurden Ergebnisse aus *in situ* ähnlichen Untersuchungen zur mikrobiellen Aktivität und dem Einfluss der Mikroorganismen auf die Materialintegrität der Bohrungen für den Standort Bierwang präsentiert. Langzeitversuche im Labormaßstab zeigen, dass es in Anwesenheit eines Stahlcoupons und einer zusätzlichen C-Quelle (z. B. CO₂ und Acetat) zur Bildung von CH₄ unter Verbrauch von CO₂ und H₂ durch methanogene Archaea kam. Die beobachtete mikrobielle Aktivität weist auf eine aktive Biozönose im Lagerstättenwasser vom Standtort Bierwang hin, die zur Methanisierung von H₂ und CO₂ fähig ist. Eine anaerobe Methanoxidation (AOM) wurde bisher nicht nachgewiesen. Entweder ist die Sulfatkonzentration mit 1,3 mg L⁻¹ im Kondenswasser des Standortes Bierwang zu gering oder die Adaptationszeit für AOM war in den Versuchsansätzen nicht ausreichend lang.

Für den Pilotstandort zur CO₂-Speicherung in Ketzin wurden Tiefenproben im Hinblick auf die Veränderungen der mikrobiellen Biozönose in den Bohrungen über einen Zeitraum von fünf Jahren untersucht. Hierzu standen Proben aus der Injektionsbohrung zur Verfügung. Die Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaft wurde mittels Mikrobiomanalyse charakterisiert. Infolge der Abnahme organischer Substanzen nahm die Häufigkeit der Fermentierer ab und die der SRB zu. Die SRB-Konsortien wurden insbesondere von *Desulfallas* spp. dominiert. Zunächst wurde die methanogene Biozönose von der methylotrophen Gattung *Methanolobus* und später von der mixotrophen Gattung *Methanosarcina* dominiert. Korrespondierend zur Abnahme der Fermentierer nahm auch die Häufigkeit von Methanosarcina ab. Stattdessen nahm die Abundanz der hydrogenotrophen Gattungen *Methanoculleus* und *Methanobacterium* zu.

Neben den Veränderungen der mikrobiellen Biozönose in Folge der Exposition mit überkritischem CO₂ dürfte auch die Abnahme der Konzentration an organischen Verbindungen im Zuge des Abbaus durch Fermentation, Sulfatreduktion und Methanogenese im Verlauf von fünf Jahren die Änderungen in der Dominanz der einzelnen Vertreter beeinflusst haben. Beispielsweise ist bekannt, dass die Gattung *Methanosarcina* bei hohen Konzentrationen an organischem Kohlenstoff die methanogene Gemeinschaft dominiert, während *Methanoculleus* besser an niedrigere Konzentrationen angepasst ist. Die Änderungen in der Zusammensetzung der *Bacteria* und der *Archaea* weist darauf hin, dass auch nach fünf Jahren Exposition mit überkritischem CO₂ in den Bohrfluiden eine stoffwechselaktive Biozönose aus SRB und Methanogenen vorhanden war, die offensichtlich immer noch erheblich durch den Eintrag von organischen Verbindungen im Zuge des Bohrprozesses beeinflusst war. Auch Jahre nach dem Eintrag von Organik, die von den Mikroorganismen als eine Energie- und Kohlenstoffquelle genutzt wird, kann daher durch mikrobielle Aktivität Korrosion in den Bohrungen gefördert werden. Dies kann selbst bei sehr widrigen Umweltbedingungen wie der Exposition mit überkritischem CO₂ und extrem hoher Salintät der Fall sein.

Durch die Langzeitversuche mit Proben vom Standort Neubrandenburg wurde gezeigt, dass die mikrobielle Aktivität und damit verbunden auch die Korrosion stark von der Temperatur abhängig ist. Bei den Versuchsansätzen, die bei 40 °C inkubiert wurden, wurden die höchste Korrosionsraten und die größte Abundanz von *Bacteria* und SRB nachgewiesen. Bei steigender Temperatur sanken sowohl Korrosionsraten als auch bakterielle Abundanzen. In Ansätzen mit einer H₂/CO₂-haltigen Gasphase war die Korrosion etwas größer als in den Ansätzen mit einer CO₂/CH₄-haltigen Gasphase.

Verwertung der Ergebnisse:

Die Veröffentlichung der Daten und ihre Interpretation kann über SUBI hinaus dazu beitragen, die langfristige Korrosionstätigkeit in der Infrastruktur von Gasspeichern abzuschätzen und Hinweise auf Wartungsintervalle bzw. Zeiträume, in denen es notwendig ist, die Infrastrukturkomponenten auszutauschen, zu geben. Dies kann den Betreibern helfen, die Lebendauer von Anlagenkomponenten abzuschätzen.

Zudem wurde gezeigt, mit welchen Experimenten, die mikrobielle Aktivität gezielt erfasst und interpretiert werden kann. Damit können insbesondere ältere Speicher systematisch auf nachteilige Entwicklungen aufgrund mikrobieller Aktivität untersucht werden. Für den zukünftigen Betrieb können neue Materialien der Infrastrukturkomponenten auf Korrosion mit diesen Tests untersucht und beurteilt werden.

1.5 THM-Multiphasen-Modellierung von Porenspeichern auf der Reservoirskala unter Berücksichtigung des in situ Spannungszustands

Beiträge zu den Teilprojekten Mod 3, VGS 2 und VGS 3 durch GFZ und TUDa

Teilprojekt Mod-3 untersuchte mittels numerischer Simulationen, ob Untertage-Gasspeicher über Power-to-Gas als Kurzeitspeicher für Strom aus regenerativen Quellen genutzt werden können. Dies würde im Unterschied zu den bislang überwiegend saisonalen Zyklen häufige und unregelmäßige Lastwechsel zwischen Injektion und Produktion erfordern. Es wurde ein allgemein anwendbarer Workflow entwickelt, der im Reservoirmaßstab eine thermohydraulische (TH) Modellierung von Mehrphasenströmung in porösen Medien mit einer mechanischen Simulation (M) zur Berechnung von Spannungen und Deformation koppelt. Damit wurde untersucht, wie ein UGS auch bei hochfrequenten Ein- und Ausspeisezyklen und einer Nutzung als Kurzzeitspeicher sicher und effizient betrieben werden kann. Ziel war es, einen allgemein anwendbaren Workflow für eine solche numerische Simulation zu entwickeln. Diese Arbeiten wurden im Rahmen einer Doktorarbeit an der TUDa durchgeführt.

1.5.1 Berücksichtigung des in situ Spannungszustandes (GFZ)

Eine wichtige Eingangsgröße für diese Modellierungen ist die Festlegung des initialen Spannungsfeldes und insbesondere dessen räumliche Variabilität aufgrund der lithologischen Schichtung im und über dem Porenspeichervolumen. Die Modellierung der Prozesse, die die Spannungen aufgrund der zyklischen Belastung des Speichers ändern, reicht alleine nicht aus, um die mechanische Kritikalität zu beurteilen. Dies veranschaulicht Abbildung 31, die zwei initiale Spannungszustände mit dem Mohr'schen Spannungskreis beschreibt. In beiden Fällen wirkt die gleiche Spannungsänderung, aber nur für den zweiten initialen Spannungszustand wird die Versagensgrenze erreicht und eine Reaktivierung einer Störung oder Generierung einer neuen Störung könnte eintreten. Die induzierten Spannungsänderungen, die durch unterschiedliche zyklischen Belastungen des Porenspeichers erfolgen, können nur bewertet werden, wenn sowohl die Spannungsänderung als auch der initiale Spannungszustand bekannt sind. Dieser Teil des Projekts Mod-3 wurde am GFZ in Potsdam erarbeitet.



Abbildung 31: Zwei unterschiedliche initiale Spannungszustände (schwarze Halbkreise) dargestellt im Mohr'schen Spannungskreis mit S₁ und S₃ der größten bzw. kleinsten Hauptspannung, σ_n der Normalspannung und τ_{max} der Scherspannung. Die gleiche Spannungsänderung (rote Halbkreise) führt nur im rechten initialen Spannungszustand zu einem kritischen Zustand bei gegebener Versagensgrenze.

Ziel der Arbeiten am GFZ Potsdam war die Quantifizierung des initialen Spannungszustandes in der Umgebung eines Porenspeichers. Wir haben hierfür unseren etablierten und validierten Workflow bei der Erstellung 3D geomechanisch-numerischer Modelle eingesetzt (Heidbach et al., 2013; Henk, 2005; Hergert et al., 2015), der folgende drei wesentliche Schritte umfasst:

- 1.) Modellbildung
 - Abstraktion und Formulierung der grundlegenden Differentialgleichungen
 - Definition der Spannungs-Dehnungsbeziehung (rheologische Gleichung)
 - Festlegung des Modellraumes und seiner inneren Geometrie
 - Diskretisierung in Finite Elemente zur Erzielung einer numerischen Lösung
 - Zuordnung von Gesteinseigenschaften zu den Finiten Elementen
- 2.) Kalibrierung des Modells
 - Anpassung an Spannungsinformationen zu S_H Orientierung, Spannungsmagnitudendaten und Spannungsregime.
- 3.) Modellanalyse und -interpretation
 - Parameterstudien und Validierung
 - Beurteilung der Modellunsicherheiten
 - Visualisierung und Analyse der 4D Modellergebnisse.

Abbildung 32 visualisiert den Modell-Workflow, um in einem beliebigen Modellvolumen der oberen Erdkruste den absoluten, dreidimensionalen Spannungszustand zu modellieren. Die 3D Geometrie des Untergrundes ist von großer Bedeutung, da diese die Variabilität der Dichte- und Steifigkeitsverteilung maßgeblich bestimmt. Die zentrale Rolle bei der Robustheit der Modellvorhersagen spielen jedoch die modell-unabhängigen Spannungsdaten, worauf wir im Folgenden im Detail weiter eingehen werden.



Abbildung 32: Workflow der 3D geomechanisch-numerischen Modellierung. Weiße Boxen zeigen die Definition von Modellgeometrie, Gesteinseigenschaften und Störungen. Die linke Abbildung ist eine 3D-Ansicht einer willkürlichen Modellstruktur mit unterschiedlichen Lithologien. Graue Boxen: Anfangsspannungsfeld und Verschiebungsrandbedingungen und Ablauf der numerischen Lösung der resultierenden partiellen Differentialgleichung. Rechte Abbildung: Diskretisiertes Modellvolumen. Die partiellen Differentialgleichungen des Kräftegleichgewichts in 3D werden mit der Finite-Elemente-Methode gelöst (aij ist der Spannungstensor, xj sind kartesische Koordinaten, ρ die Dichte und Xi- die Volumenkräfte). Orange Boxen: Kalibrierung des Modells mit modell-unabhängigen Daten. Gelbe Box: Wenn die Anpassung an die modellunabhängigen Daten akzeptabel ist, kann die Interpretation und Analyse der Modellergebnisse durchgeführt werden.

Die Modellierung des Spannungszustandes auf dem Maßstab eines Porenspeichers, oder allgemeiner an einem Georeservoir, muss grundsätzlich zwei Herausforderungen begegnen. 1.) Die Magnituden der tektonischen Spannungen werden zum großen Teil durch langwellig wirkende tektonische Prozesse auf wesentlichen größeren Skalen verursacht, wie z.B. den Plattenrandkräften und großräumigen Verteilungen der Gesteinsdichte und der Steifigkeiten (Heidbach et al., 2007; Rajabi et al., 2017; Tingay et al., 2005). 2.) Innerhalb der Abmessungen eines Reservoirmodells gibt es in der Regel keine oder nicht ausreichende Spannungsdaten, um die Modelle kalibrieren zu können (Abbildung 33).

Ein Meilenstein, der am GFZ erreicht wurde, war die Datenkompilation mit einem besonderen Fokus auf Spannungsmagnitudendaten sowie die Entwicklung des Tools ApplePY, das die Diskretisierung bzw. die Zuordnung von Gesteinseigenschaften zu den Finiten Elementen wesentlich vereinfacht und der Weiterentwicklung des Tools FAST Calibration, das die Modellkalibrierung, also die Anpassung des Modell an die Spannungsmagnitudendaten, weitgehend automatisiert und somit die Umsetzung der Modellierung beschleunigt. Für die Visualisierung konnte eine Weiterentwicklung des Add-ons *GeoStress* (Heidbach et al., 2020) für die Software Tecplot 360 EX verwendet werden.



Abbildung 33: Die Karte zeigt in den Linien die Daten zur Orientierung der größten horizontalen Spannung S_H aus der Datenbank des World Stress Map Projektes (Heidbach et al., 2018; Reiter et al., 2016; Reiter et al., 2015). Die Symbole auf den Linien zeigen dabei den Spannungsindikator an und weisen aus, dass die hier gezeigten Datensätze alle aus Bohrloch-Randausbrüchen interpretiert wurden. Das orange Rechteck zeigt das regionale Modellgebiet; das blaue Rechteck die ungefähre Lokation des Standortmodells des Porenspeichers Schnaitsee ca. 50 km östlich von München. Diese Größenangaben der Modellgebiete verdeutlichen, dass innerhalb eines Standortmodells in der Regel keine oder nur wenige Kalibrierungsdaten vorliegen. Der gelbe Stern zeigt den einzigen publizierten Spannungsmagnitudendatenpunkt von Seithel et al. (2015), der zu Beginn des Projektes im Modellgebiet verfügbar war.

1.5.1.1 Datenkompilation und Entwicklung von Softwaretools

Zunächst wurden die vorliegenden Spannungsmagnituden für Deutschland aus dem World Stress Map (WSM) Database Release 2016 gesichtet und deren Qualität überprüft. Die WSM Datenbank kompiliert standardmäßig nur Spannungsorientierung und überprüft deren Qualität nach einem international anerkannten Qualitäts-Ranking. Daten zu Spannungsmagnituden wurden zwar zum Teil mit in die Datenbank aufgenommen, aber nicht bezüglich der Zuverlässigkeit überprüft. Um die Datenlage insbesondere im Großraum der Bayerischen Molasse zu verbessern, wurde Kontakt zur Geothermie Allianz Bayern aufgenommen, da diese in Kooperation mit dem Geologischen Landesamt von Bayern und der Industrie neue Spannungsmagnitudendaten verfügbar machen konnten.

Obwohl die ersten Gespräche grundsätzlich sehr positiv verliefen, war die Freigabe für die Öffentlichkeit nicht für alle Daten zu bekommen, aber durch persönliche Kontakte und Anschreiben der einzelnen Datenbesitzer der verschiedenen Bohrlokationen konnte eine Teilfreigabe erzielt werden. Es konnten alle Daten, allerdings zum Teil ohne Nennung der Lokationen und durch eine anonymisierte Darstellung, genutzt werden.

Zur Modellkalibrierung wurden u.a. von der Geothermie-Allianz Bayern (GAB) und den Stadtwerken München 43 *Formation Integrity Tests* (FIT) und 9 *Leak-off Tests* (LOT) zur Verfügung gestellt. Alle Spannungsmagnitudendaten, die im Rahmen dieser Recherchen und Kontakte zusammengetragen werden konnten und frei verfügbar sind, wurden in die erste Spannungsmagnitudendatenbank für Deutschland und angrenzende Gebiete, die in einem komplementären Projekt kompiliert wurden, integriert (Morawietz et al., 2020). Diese Datenbank ist frei verfügbar und bildet einen essentiellen Grundstock an Daten für die Kalibrierung anderer regionaler geomechanisch-numerischer Modelle.

Für die Geometrieerstellung wurde eine neue Vorgehensweise entwickelt, getestet und als frei verfügbares Tool mit dem Namen ApplePY veröffentlicht (Ziegler et al., 2019b). Dieses Tool erlaubt eine hohe Flexibilität und somit eine Anpassung an unterschiedliche Settings, ohne die Modelle jedes Mal neu zu diskretisieren. Letzteres würde einen hohen Zeitaufwand bedeuten und eine Quelle von zusätzlicher, schwierig zu quantifizierender Unsicherheit in die Rechnungen einbringen. Die Modellgeometrie besteht dabei nicht aus vordefinierten Schichtmächtigkeiten der Deckgesteine oberhalb der Antiklinale, die den Porenspeicher enthält, sondern aus 30-40 Schichten von Finiten Elementen (Hexaeder-Elemente mit linearen Ansatzfunktionen) mit weitgehend gleicher Mächtigkeit. Jede Elementschicht wird zu einer Einheit zusammengefasst, der jeweils eine eigene Gesteinseigenschaft über ein Input-Deck zugeordnet wird. Durch Zusammenfassen von Elementschichten können unterschiedliche Mächtigkeiten der Deckschichten simuliert werden. Ebenfalls können jeder Einheit beliebige rheologische Eigenschaften zugeordnet werden. Mit dieser Vorgehensweise können unterschiedliche Abfolgen von mechanisch kompetenten und weicheren Schichten mit unterschiedlichen Schichtmächtigkeiten mit dem generischen Modell getestet werden, ohne jedes Mal eine neue Diskretisierung durchführen zu müssen. Weitere technische Details des Tools, dessen Anwendung und ein praktisches Beispiel sind in dem veröffentlichten Manual aufgeführt (Ziegler et al., 2019a).

Im Rahmen des Projektes wurde der Prozess der Kalibrierung von geomechanisch-numerischen Modellen verbessert. Die Entwicklung erfolgte im Rahmen der Dissertation von Moritz Ziegler, zudem wurde das semi-automatische Kalibrierungs-Tool FAST weiterentwickelt. Das Tool FAST Calibration ist ebenfalls frei verfügbar und publiziert (Ziegler, 2018b). Hierzu ist ebenfalls ein umfangreiches und detailliertes Manual publiziert, in dem alle technischen Details erläutert werden (Ziegler, 2018a).

1.5.1.2 Modellergebnisse

Das Modellgebiet muss, wie eingangs erklärt, ein relativ großes Gebiet umfassen, um eine ausreichende Anzahl von Kalibrierungsdaten innerhalb des Modellvolumens zu erhalten. In Abbildung 33 zeigt das orange Rechteck die lateralen Abmessungen des Modells von ca. 145 x 70 km² und einer Tiefe von 11 km. Die Lithologie des Modells basiert auf dem publizierten geologischen Modell von Przybycin et al. (2014). Das Modell ist mit knapp 3 Millionen Hexaeder Elementen diskretisiert. Die Kalibrierung erfolgt letztendlich anhand von 9 Datenpunkten zur *S*_h Magnitude und 4 Datenpunkten zur *S*_H Magnitude. Zur Bestimmung eines Best-Fit Modells mit quantifizierten Unsicherheiten werden 9 x 4 = 36 Modelle gerechnet, also alle möglichen Paare der S_h und S_H Datenpunkte. Weitere Details zum technischen Vorgehen und weiteren Modelleigenschaften sind in der open access Publikation von Ziegler und Heidbach (Ziegler and Heidbach, 2020a) bzw. im Manual des FAST Calibration Tools zu finden. Im Folgenden stellen wir die zentralen Modellergebnisse vor.

Das Modellergebnis mit der besten Anpassung an die Spannungsinformation (Modell mit der kleinsten mittleren Abweichung gegenüber den Spannungsdaten) zeigt deutlich, dass Spannungsänderungen zwischen den mechanisch kompetenten und inkompetenten Schichten vorliegen und dass die Spannungsmagnituden mit der Tiefe nicht einem linearen Gradienten folgen (Abbildung 34, Abbildung 35). In beiden Abbildungen ist zum Beispiel der Einfluss der südwärts einfallenden Malm-Einheiten auf den Spannungszustand im Profil von A-A' angegeben. Die mit der Tiefe ansteigende Spannungsgröße ist in der Kartenansicht des Eintauchhorizonts im oberen Malm-Delta dargestellt. Die Standardabweichung von S_H beträgt ungefähr zehnmal die Standardabweichung von S_h . Der Einfluss des Landshut-Neuöttinger-Hochs auf den Spannungszustand wird durch eine Abnahme der Magnituden (im Nordosten der Kartenansicht) angezeigt. Sowohl S_H als auch S_h zeigen kleinere Mittelwerte und kleinere Standardabweichungen im Bereich des Landshut-Neuöttinger-Hochs.

Im Allgemeinen ist die Standardabweichung im Grundgebirge im Vergleich zu den Sedimenten deutlich höher. Sowohl im Grundgebirge als auch in den Sedimenten ist ein genereller Trend einer Zunahme der Standardabweichung südwärts zum Gebirge hin zu beobachten. Dieser Trend, der die Vorlandmolasse von ihrem Untergrund unterscheidet, stoppt innerhalb der gefalteten Molasse zur Gebirgsfront hin, die ebenfalls nahe der Modellgrenze liegt.

Eine Zunahme der Modellunsicherheiten kann beobachtet werden, wenn die Variabilität der Materialeigenschaften sowie laterale oder vertikale Inhomogenitäten innerhalb derselben Einheit betrachtet werden, die sich auf alle modellierten Spannungsgrößen auswirken können. Verfügbare Studien aus anderen Bereichen weisen auf große Standardabweichungen der Materialeigenschaften hin. Dies ist insbesondere für die Lage der Kalibrierdatenpunkte von Bedeutung. Aufgrund des Modellierungsansatzes, der Verschiebungen als Randbedingungen verwendet, um den Spannungszustand zu induzieren, ist es unbedingt erforderlich, dass die Kalibrierdatenpunkte mechanisch in der gleichen Lithologie und Tiefe im Modell und in der Realität liegen. Daher wären Informationen über den Spannungszustand (HF, LOT, FIT) in Kombination mit dreiachsigen Labortests zur Abschätzung der Materialeigenschaften aus derselben Tiefe und Lithologie wünschenswert, sind aber selten verfügbar. Der numerische Fehler aufgrund der Wahl der linearen finiten Elemente und der Diskretisierung wurde durch Erhöhung der Auflösung auf finite Elemente zweiter Ordnung überprüft. Die Abweichung zu den linearen finiten Elementen beträgt im Durchschnitt < 1 % mit lokalen Maxima < 3 % und ist somit deutlich kleiner als die Unsicherheiten, die durch die Anpassung an die Spannungsmagnitudendaten entstehen.

Darüber hinaus weisen die für die Modellkalibrierung verwendeten Datensätze über die Spannungsgrößen keinen (berichteten) Messfehler auf, da in der Regel nur eine Bewertung oder Messung pro Ort durchgeführt wurde. Es werden auch keine Messfehler berichtet, die wahrscheinlich vorhanden sind und dazu verwendet werden könnten, den Datensätzen eine Unsicherheit zuzuordnen. Deren Kenntnis würde die Aussagekraft des Modells weiter verbessern, auch wenn die modellierten Unsicherheiten wahrscheinlich gleichzeitig zunehmen würden. Zusätzlich zur Schätzung des durchschnittlichen Spannungszustandes und seiner Unsicherheiten wird ein Best-Fit-Modellszenario nach dem Ansatz der Minimierung der Unterschiede zwischen modelliertem und beobachtetem Spannungszustand geschätzt. Der Best-Fit-Ansatz verwendet alle verfügbaren Datensätze, ohne sie zu gewichten, und folgt damit dem in Ziegler und Heidbach (2020a) vorgestellten Kalibrierungsverfahren für eine Minimierung der Unterschiede zwischen Modell und Beobachtung.



Abbildung 34: Gemittelte Spannungsmagnitude und Standardabweichung von S_{hmin}. Oben: S_{hmin}-Mittelwert der Magnitude in den Isolinien und Standardabweichung in der Kontur, kartiert auf der Malm-Delta Formation, die nach Süden abfällt. Schwarze Linien zeigen die Lage der NS- und EW-Profile A-A' bzw. B-B'. Unten: Süd-Nord (A-A') und West-Ost (B-B') Profile zeigen die mittlere Magnitude von Shmin mit einer vertikalen Überhöhung von 1:2. Der Schnittpunkt der Profile ist durch die gepunktete Linie dargestellt.



Abbildung 35: Gemittelte Spannungsmagnitude und Standardabweichung von S_{Hmax} . Gleiche Legende und Beschreibung wie in Abbildung 39.

Im Allgemeinen ist die Größe von S_h im Vergleich zum durchschnittlichen Spannungszustand überbestimmt; die Größe von S_H wird hingegen durch das Best-Fit-Modell-Szenario unterschätzt. In den Molassesedimenten ist der S_h im Best-Fit-Modellszenario etwa 0,3 MPa größer als der durchschnittliche Wert von S_h . In tieferen Bereichen überbewertet das Best-Fit-Szenario S_h um 1 bis 2 MPa. Eine Unterschätzung der S_{Hmax} durch das Best-Fit-Modell von bis zu 6 MPa ist angezeigt. Diese Kombination aus Über- und Unterschätzung von S_H und S_h ist insbesondere in einer Strike-Slip-Einstellung sinnvoll, da sie die Differenzspannung S_1 - S_3 verringert. Ein vom Best-Fit-Modell abgeleiteter Mohr-Kreis zeigt einen weniger kritischen Spannungszustand an als derjenige, den der Durchschnitt der 36 Modellszenarien liefert. Daher scheint die Reaktivierung von Störungen weniger wahrscheinlich, wenn der Spannungszustand von einem Best-Fit-Modell abgeleitet wird.

1.5.1.3 Publikationen und Verfügbarkeit der Software und Daten (GFZ)

Die Modellergebnisse sind in einer wissenschaftlichen Publikation von Ziegler und Heidbach (2020a) veröffentlicht worden. In der Publikation wird im Detail auf die Modellunsicherheiten eingegangen und die technische Umsetzung des Modells. Das Modell mit der besten Anpassung an die Daten zum Spannungstensor, die für die Modellkalibrierung verwendet wurden, sind als Datenpublikation inklusive einer Datenbeschreibung ebenfalls von Ziegler und Heidbach (2020b) veröffentlicht worden. Die folgenden Variablen stehen dabei zur Verfügung: die Koordinaten und die vertikale Spannung S_V sowie der Mittelwert und die Standardabweichung der S_{H-} und S_h -Größen, das Regime Stress Ratio (RSR) nach Simpson (1997) und die Differenzspannung S_1 - S_3 , wobei S_1 und S_3 de facto S_H und S_h entsprechen.

Damit ist sichergestellt, dass lokale Reservoirmodelle innerhalb des Modellgebietes diese Daten als initiales Spannungsfeld verwenden können, um robustere Aussagen bezüglich der Auswirkungen von Spannungsänderungen durch die Nutzung des Untergrundes als Speicher oder anderen Nutzungsformen wie z.B. der Tiefen Geothermie nutzen können.

Die aus diesem Modell gewonnene Beschreibung des 3D Spannungstensors mit den sechs unabhängigen Komponenten und Varianten hierzu, resultierend aus unterschiedlichen Simulationen durch unterschiedliche Gewichtung der Spannungsmagnitudendaten bei der Kalibration, oder durch unterschiedliche Annahmen zum tektonischen Regime, wurden an den Projektpartner an der TU Darmstadt geliefert.

1.5.2 THM-Multiphasen-Modellierung von Porenspeichern auf der Reservoirskala (TUDa)

Die praktische Anwendbarkeit des Modellierungskonzeptes wurde anhand eines ehemaligen Erdgasfeldes im Molasse-Becken östlich von München überprüft. Für diese Fallstudie wurde die Konversion zu einem Gasspeicher mit hochfrequenten Ein- und Ausspeisezyklen untersucht. Das 3D Untergrundmodell wurde anhand von seismischen und Bohrungsdaten aufgebaut, während für die Parametrisierung überwiegend bohrlochgeophysikalische Daten genutzt wurden. Die Kalibrierung des gekoppelten THM-Modells erfolgte anhand von Porendruckdaten aus der Produktions- und anschließenden Shut-in-Phase sowie mithilfe von *in situ* Spannungsmessungen. Mit diesem Modell wurden anschließend elf verschiedene Kurzzeitszenarien zur Ein- und Ausspeisung untersucht, wobei nicht nur regelmäßige Zyklen, sondern auch eine unregelmäßige zeitliche Verteilung entsprechend des Anfalls an Überschussstrom bzw. des Strombedarfs simuliert wurde. Darüber hinaus erlaubt das Modell bzw. der Workflow allgemein die Prognose aller Komponenten des Spannungstensors (total und effektiv) im gesamten Modellraum, d.h. nicht nur im Reservoir, sondern auch in der überlagernden Schicht, was z.B. für Bohrpfadplanung, die Integrität der Abdeckung sowie das Reaktivierungspotential von Störungen relevant ist. Darüber hinaus können auch Höhenänderungen an der Erdoberfläche infolge Porendruckanstieg bzw. -absenkung adressiert werden.

Verwendet wurden die Software-Pakete der Fa. Schlumberger, d.h. Techlog[®] zur Auswertung und Interpretation der Bohrlochgeophysik, Eclipse[®] für die Fluid flow Simulation und Visage[®] für die

geomechanischen Modellierungen. Für die Erstellung des Untergrundmodells wurde das Programm Petrel[®] genutzt.

Vom Industriepartner Uniper SE wurde dankenswerterweise ein sehr umfangreiches Datenpaket zu einem ehemaligen Erdgasfeld im Molassebecken östlich von München bereitgestellt. Dieser Datensatz diente als Fallstudie sowohl für die Erstellung eines gekoppelten THM-Lagerstättenmodells als auch für die Simulation einer Konversion in einen Kurzzeitspeicher. Allerdings ist die Fallstudie bislang noch kein UGS, so dass der ursprünglich geplante Vergleich der Modellierungsergebnisse zur Hebung und Senkung der Erdoberfläche mit Messdaten von Satellitenbeobachtungen nicht durchgeführt werden konnte. Ein aktiv genutzter UGS besteht nur wenige km entfernt in einer geologisch sehr ähnlichen Struktur wie die bearbeitete Fallstudie. Dazu konnten aus Gründen der Vertraulichkeit allerdings keine geologischen Daten und Betriebsparameter von Uniper SE bereitgestellt werden.

Zur Bearbeitung der Projektfragestellungen (s.o.) wurde ein allgemein anwendbarer Workflow zur Erstellung von 3D THM-Multiphasenmodellen für UGS entwickelt (Abbildung 36). Dazu ist eine Kopplung der thermisch-hydraulischen (TM) mit den mechanischen (M) Modellierungen erforderlich. Die Modellgeometrie, d.h. das Strukturmodell mit den lithostratigraphischen Einheiten und den Störungen, ist dabei für beide Modelle gleich. Bei der one-way-Kopplung werden zu bestimmten Zeitpunkten im Verlauf der Simulation die berechneten Porendrücke und Temperaturen von dem TH-Modell Eclipse[®] an das M-Modell Visage[®] übergeben und dort für die Bestimmung von effektiven und thermischen Spannungen genutzt. Im Fall der two-way-Kopplung werden dann zusätzlich noch die Veränderungen in der Geometrie, die zu Porositäts- und Permeabilitätsänderungen führen, von Visage[®] wieder zurück an Eclipse[®] transferiert bzw. das TH-Modell entsprechend aktualisiert. Diese vollständige Kopplung der beiden Berechnungsstränge ist insbesondere bei ausgeprägter Reservoirkompaktion relevant, allerdings sehr rechenzeitintensiv. Die Parametrisierung der verschiedenen Modellierungsansätze kann dabei anhand von Materialkennwerten aus Bohrkernen oder – vielfach über empirische Korrelationen – aus bohrlochgeophysikalischen Daten erfolgen. Mit Hilfe solcher 1D MEM ("mechanical earth model") lassen sich nicht nur felsmechanische Kenngrößen, sondern auch erste Abschätzungen zu Porendrücken und tektonischen Spannungen ableiten. Die 1D MEM's aller zur Verfügung stehenden Bohrungen können dann mittels geostatistischer Verfahren oder unter Verwendung von seismischen Daten aus einer AVO (amplitude versus offset) Analyse auf den Modellraum des 3D MEM übertragen werden. Nach der Kalibrierung des Modells anhand von unabhängigen, d.h. für die Modellerstellung nicht verwandten Daten ist das gekoppelte THM-Modell sowohl für die Charakterisierung des aktuellen Zustandes als auch für die Simulation verschiedener Szenarien zukünftiger Porendruckentwicklung bereit.



Abbildung 36: Flussdiagramm zur Kopplung der verschiedenen Modellierungsansätze, d.h. der thermohydraulischen und der mechanischen Simulationen. Beide nutzen das gleiche Strukturmodell und die Parametrisierung erfolgte anhand von Logdaten aus der Bohrlochgeophysik.

Für den mechanischen Modellierungsteil wurde das eigentliche Reservoirmodell (Abbildung 37) zur Vermeidung von Randeffekten in einen deutlich größeren, 30 × 24 x 5 km³ messenden Modellblock eingebettet (Abbildung 38, links). Entsprechend sind auch nicht nur THM-Materialparameter für den unmittelbaren Reservoirbereich, sondern auch für die gesamte Überlagerung bis zur Erdoberfläche sowie für das Unterlager und das Sideburden erforderlich. Für die Fallstudie wurde das 3D MEM von der Erdoberfläche bis in 5 km Tiefe in 12 Horizonte bzw. 11 lithostratigraphische Einheiten unterteilt (Abbildung 38, rechts). Die Ränder dieses erweiterten geomechanischen Modells stellen auch gleichzeitig die Schnittstelle zu dem großräumigen Molassebecken-Modell der Arbeitsgruppe vom GFZ dar. Die dort abgeleiteten Spannungsorientierungen und -magnituden liefern die Randbedingungen für das 3D THM-Modell der UGS-Fallstudie. Die Ergebnisse der 1D MEM's aller Bohrungen wurden anschließend mittels Kriging aufskaliert und zur Population des 3D MEM der Fallstudie mit mechanischen Materialparametern (insb. Elastizitätsmodul, Querdehnungszahl und Dichte) verwandt (Abbildung 39). Insgesamt besteht dieses 3D MEM aus ca. 270.000 Elementen.



Abbildung 37: 3D Strukturmodell des UGS der Fallstudie mit einer großen und zwei kleineren Störungen. Die Farbkodierung zeigt die Porositätsverteilung innerhalb des Reservoirs.



Abbildung 38: Links: 3D geomechanisches Modell. Der relevante Reservoirbereich ist zur Vermeidung von Randeffekten in Over-, Under- und Sideburden eingebettet. Rechts: Das Modell erstreckt sich über 12 Horizonte bzw.11 lithostratigraphische Einheiten von der Erdoberfläche bis in eine Tiefe von 5 km.



Abbildung 39: Parametrisierung des geomechanischen 3D Modells anhand von 1D MEM's der neun Bohrungen. Die Farbkodierung zeigt die räumliche Verteilung des Elastizitätsmoduls im zentralen Modellbereich für alle Modelleinheiten.

Für den thermohydraulischen Teil der Modellierung wurde das von Uniper SE bereitgestellte Eclipse^{*}-Modell genutzt. Dieses Strömungsmodell konnte anhand von Messungen kalibriert werden, die die Porendruckentwicklung in der Lagerstätte vom Initialzustand über die bis 1976 andauernde Förderung und die seitdem andauende Shut-in-Phase erfassen (Abbildung 40). Der Endzustand dieses so validierten Modells stellt hinsichtlich Porendrücken und Gassättigung den Initialzustand für die – fiktive – Konvertierung zu einem Speicher und die verschiedenen Ein- und Ausspeiseszenarien dar.

Hinsichtlich des rezenten Spannungstensors wurde das gekoppelte THM-Modell an gemessenen Spannungsdaten kalibriert, die von den Projektpartnern GFZ Potsdam und Gesteinslabor Jahns zur Verfügung gestellt wurden. Am Kalibrierungspunkt in der Bohrung X6 (Abbildung 41) konnten die Beobachtungsdaten auf Reservoirniveau mit einer lokalen Orientierung von S_H von 170° sowie die Magnituden für S_v (42.8 MPa), S_H (38.7 MPa) und S_h (36.7 MPa) nachvollzogen werden (Abbildung 41). Für das Gesamtmodell sind dazu Strainbeträge von $\varepsilon_H = 0,00175$ in N-S-Richtung bzw. $\varepsilon_h = 0,0012$ in W-E-Richtung erforderlich. Das Reservoir liegt daher trotz seiner Lage im Vorland der Alpen in einem tektonischen Abschiebungsregime mit S_V > S_H> S_h.



Abbildung 40: Kalibrierung des Strömungsmodells (blaue Kurve) an den gemessenen Porendrücken (rote Punkte) während der Produktions- und anschließenden Shut-in-Phase des Erdgasfeldes. Die Weiterberechnung dieses History match liefert den Anfangszustand für die Modellierung der hochfrequenten Ein- und Ausspeisezyklen, d.h. die Konversion des ehemaligen Erdgasfeldes in einen UGS.



Abbildung 41: Modellierte Verteilung der tektonischen Spannungen im Topbereich des Reservoirhorizontes. a) Magnitude von SH_{max} , b) Orientierung von SH_{max} , c) Magnitude von Sh_{min} und d) Magnitude von S_{v} .

Die Porendruckentwicklung aus dem Eclipse^{*}-Modell kann auch genutzt werden, um mit dem gekoppelten THM-Modell die Verschiebungen an der Erdoberfläche zu prognostizieren. Leider liegen hier jedoch keine historischen geodätischen Messdaten zur Überprüfung der Modellprognose vor. Nach den Simulationsergebnissen bestand zum Zeitpunkt der maximalen Druckabsenkung, d.h. am Ende der Produktionsphase des Erdgasfeldes, ein ellipsenförmiger Absenkungsbereich mit einer maximalen Subsidenz von 13 mm (Abbildung 42). Dieser Absenkungsbereich hat sich in der Folge durch den Porendruckanstieg in der Shut-in-Phase durch die rückströmenden Porenwässer fast wieder ausgeglichen und weist aktuell nur noch eine geringe Absenkung von maximal 2 mm auf.



Abbildung 42: Modellierte Absenkung der Erdoberfläche am Ende der Erdgasproduktion (a) und unmittelbar vor Beginn der Nutzung als UGS mit hochfrequenter Ein- und Ausspeicherung.

Mit dem gekoppelten THM-Modell, dessen TH-Teil durch den History match an den Porendrücken und für den M-Teil an den *in situ* Spannungsmessungen kalibriert wurde, wurden anschließend elf verschiedene Ein- und Ausspeiseszenarien untersucht. Neun davon beschreiben regelmäßige Zyklen mit 1 Woche Injektion – 1 Woche Shut-in – 2 Wochen Produktion – 1 Woche Shut-in, wobei zur Erhöhung des Injektions- und Fördervolumens nicht nur Szenarien mit einer Bohrung, sondern auch mit zweien und einer zusätzlichen Horizontalbohrung betrachtet wurden. Entsprechend der lokalen Gegebenheit sind die maximalen und minimalen Porendrücke bei der Ein- und Ausspeisung (Versagen des Speichergesteins, Sandproduktion) limitierende Faktoren, ebenso die Menge des bei der Produktion mitgeförderten Wassers (5 m³/Tag). In zwei weiteren Szenarien wurden für die Injektions- und Produktionszyklen bzw. die Kurzzeitspeicherung unregelmäßige Zyklen angenommen. Deren zeitliche Verlauf orientiert sich dabei beispielhaft an dem Anfall von Überschussstrom aus regenerativen Quellen bzw. dem Strombedarf wie er in 2017 auftrat (Abbildung 43). Aus den verschiedenen Szenarien können u.a. die maximal möglichen Injektions- und Produktionsmengen abgeleitet und damit die entsprechend erforderlichen Kapazitäten für Power-to-Gas und die Rückverstromung quantifiziert werden.



Abbildung 43: Szenario mit Ein- und Ausspeicherzyklen entsprechend der Verfügbarkeit von Überschussstrom aus regenerativen Quellen in 2017 (ohne Limitierung durch mitproduziertes Wasser). (a) Porendruck in Lagerstätte (FPR), (b) Bottom hole pressure (WBHP) für Bohrung X6, (c) Wasserproduktionsrate (WWPR) für Bohrung X6 und (d) Gasinjektions-(WGIR) und -produktionsraten (WGPR) für Bohrung X6.

Das Speichervolumen, das für eine Kurzzeitspeicherung zur Verfügung steht, kann durch mehrere Bohrungen, insb. Horizontalbohrungen, erhöht werden und/oder durch höhere Injektions- bzw. Lagerstättendrücke. Letzteres ist allerdings durch die Reaktivierung von Störungen und die Integrität der Abdeckung limitiert. Die entsprechende Analyse mit dem gekoppelten THM-Modell zeigt, dass bereits bei Porendrücken von ca. 19 MPa, also ca. 25 % über dem initialen Wert, die reduzierten Effektivspannungen zu einem Versagen von Störungszonenelementen bzw. zu einer Reaktivierung der das Reservoir begrenzenden Hauptstörung kommt (Abbildung 44). Entsprechend kann eine Kapazitätssteigerung des potentiellen UGS im Wesentlichen nur durch zusätzliche Bohrungen wie sie in einer Reihe von Modellszenarien auch simuliert wurden, erreicht werden.

Der Aspekt von zeitlichen Änderungen in den mechanischen Eigenschaften, d.h. eine Speicheralterung, wurde nicht weiterverfolgt, da die Laboruntersuchungen des Projektpartners Gesteinslabor Jahns an Probenmaterial aus dem Fallstudie UGS keinerlei Änderungen in Anhängigkeit von zyklischen Porendruckänderungen zeigten.



Abbildung 44: Analyse des Reaktivierungspotentials der Hauptstörung, die den Speicher nach Norden begrenzt. Bereits bei einer Erhöhung des initialen Porendrucks um den Faktor 1,25 (ca. 19 MPa) werden lokal kritische Spannungszustände erreicht und es kommt zu einem Versagen bzw. zu einer Plastifizierung von Störungszonenelementen (weiße Boxen).

1.5.3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

Die Arbeiten zu den Modellierungskonzepten, die Schaffung bzw. Erweiterung von Softwaretools und die Anpassungsstrategie an Spannungsinformationen definieren den aktuellen Stand der Forschung. Bei den bisherigen Modellen, die von Betreibern (Firma Erdwerk für die Stadtwerke München oder Uniper SE) in Auftrag gegeben worden sind, wird jeweils auf das Reservoir und die Prozesse, die während der Nutzung oder z. B. durch die Bohrung zu Änderungen führen, fokussiert, während der initiale Spannungszustand nicht repräsentiert war.

Die hier vorgestellten Arbeiten haben gezeigt, dass die Modellunsicherheiten sehr groß sind, da die Anzahl der zur Verfügung stehenden Validierungsdaten (Spannungsmagnituden) insgesamt sehr gering ist, bzw. die Qualität der Spannungsinformationen recht gering ist. Durch die Erweiterung des Kalibrierungskonzeptes, bei dem obere und untere Grenzen der Spannungsmagnituden mit Gewichten als Kalibrierungspunkte mit eingebracht werden können, konnten die Modellunsicherheiten signifikant reduziert werden. Das Auftreten bzw. nicht Vorhandensein von Bohrlochrandausbrüchen, bohrungsinduzierten Zugrissen, LOTs und FITs sowie die beobachtete natürliche Seismizität liefern zwar keine direkten Daten, aber wesentliche Aussagen, ob z.B. ein kritischer Zustand erreicht wurde oder nicht.

Durch das neue Geologiedatengesetz könnten in Zukunft mehr Spannungsmagnitudendaten gewonnen werden, um die in SUBI erstellten Modelle auf regionaler bzw. lokaler Skala zu aktualisieren. Weitere qualitativ hochwertigen Spannungsmagnitudendaten können letztendlich die Modellunsicherheiten verringern, sodass der Eingangsparameter, also das initiale Spannungsfeld in den lokalen THM-Modellen, weniger Unsicherheiten generiert und die Ergebnisse robuster werden.

Als ein wesentliches Ergebnis wurde ein Workflow zur Erstellung gekoppelter THM-Modelle, der allgemein auf UGS in porösen Medien anwendbar ist, aufgebaut. Dabei sind die Arbeitsschritte zur Parametrisierung des Modells über 1D MEM insbesondere für die Konversion älterer Erdgasfelder in UGS interessant, bei denen aus der Erschließungsphase nur unvollständige Logdaten vorliegen. Zudem erfasst das 3D Modell nicht nur den unmittelbaren Reservoirbereich, sondern auch die ganze

Überlagerung, sodass auch Hebung und Senkung an der Erdoberfläche als Reaktion auf Porendruckänderungen analysiert werden können. Generell liefert der gekoppelte Modellierungsansatz den vollständigen Spannungstensor (total und effektiv) sowie das Porendruckfeld für den gesamten Modellraum und für beliebige Betrachtungszeiträume (historisch, rezent und für zukünftige Injektions- und Produktionsszenarien). Diese Informationen können z.B. für die Projektierung weiterer Bohrungen (wg. Bohrlochstabilität insbesondere für Horizontalbohrungen relevant), zur Optimierung des Speicherbetriebs und insbesondere auch zur Festlegung des sicheren maximalen Speicherdrucks und damit der Gesamtkapazität des Speichers verwandt werden. Limitierende Faktoren sind hier der Erhalt der Integrität von Speichergestein und Abdeckung sowie der Störungen.

Der Workflow konnte erfolgreich auf ein ehemaliges Erdgasfeld östlich von München angewandt und die hypothetische Konversion in einen Kurzzeit-UGS untersucht werden. Dabei wurden sowohl regelmäßige als auch – in Anlehnung an die Verfügbarkeit von Überschussstrom angelehnte realistischere – zeitlich variable Ein- und Ausspeisezyklen untersucht. Im konkreten Fall ergeben sich Limitierungen durch maximale und minimale Lagerstättendrücke und die Menge des mitproduzierten Wassers, so dass auch Szenarien mit mehreren, z.T. horizontalen Bohrungen bearbeitet und die maximale Speicherkapazität abgeschätzt wurden.

Verwertung der Ergebnisse

Die Bereitstellung durch Veröffentlichung sowohl des Modellkonzeptes als auch der Software-Tools, kann auch über SUBI hinaus dazu beitragen, die Abschätzung der initialen Spannungsbedingungen lokaler Reservoirmodelle erheblich zu verbessern.

Als ein wesentliches Ergebnis liefert das Teilprojekt Mod-3 einen Workflow zur Erstellung gekoppelter THM-Modelle, der allgemein auf UGS in porösen Medien anwendbar ist. Dabei sind die Arbeitsschritte zur Parametrisierung des Modells über 1D MEM insbesondere für die Konversion älterer Erdgasfelder in UGS interessant, bei denen aus der Erschließungsphase nur unvollständige Logdaten vorliegen.

Da mit dem gekoppelten Modellierungsansatz der vollständige Spannungstensor und der Porendruck für den gesamten Modellraum und für beliebige Betrachtungszeiträume berechnet werden kann, können die Ergebnisse aus SUBI helfen, Bohrungen zu projektieren, den Speicherbetrieb im Hinblick auf Sicherheit und Effizienz zu optimieren und insbesondere den maximalen sicheren Speicherdruck zu ermitteln.

2 Dichtigkeit der Speicherinfrastruktur unter zyklischer Belastung -Technikumsexperimente und Modellierung

Beiträge zu den Arbeitspaketen Exp1, Mod1 und VGS-2 durch KIT-TP, KIT-IG

2.1 Ziele und Aufgabenstellungen

Der Einfluss von extremen zyklischen Belastungen auf die Dichtigkeit der UGS-Infrastruktur (Bohrungen) steht im Fokus der Arbeiten. Es wurde untersucht, ob und wie zyklische Druck- und Temperaturänderungen mit höherer Frequenz zu sicherheitsrelevanten Dichtigkeitsverlusten (Permeabilitätsveränderungen) in den Bohrungen führen können. Dabei wurde der Verbund Gebirge-Zement-Verrohrung experimentell betrachtet und die experimentellen Ergebnisse modelliert. Fehlstellen im Verbund (Abbildung 45) können zu Migration des eingeschlossenen Gases führen, was für stationäre Druckverhältnisse zuvor nur teilweise untersucht wurde (Schilling et al. 2015). Für zyklische Belastungen fehlten bisher experimentelle Ansätze. Für die großmaßstäblichen Untersuchungen im Vorhaben wurden spezielle Tiefbohrzemente (Projektpartner Dyckerhoff) eingesetzt, die bei Speichererschließungen verwendet wurden bzw. werden können.



Abbildung 45: Verfülltes Bohrloch mit Fehlstellen durch die Zementation. Röhrenförmige Fehlstellen (1) und (2) mit oder ohne Füllung (mud), (3) Risse, (4) Spalten, (5) Mikro-Annuli, (6) Bereiche mit hohen Permeabilitäten (7) (Kromer et al. 2014)

Die Aufgabenstellung umfasste (1) die Schaffung der experimentellen Möglichkeiten (Technikumsversuche) durch Umbau bzw. Neukonstruktion bestehender Anlagen für zyklische Druckund Temperaturschwankungen, (2) die experimentelle Untersuchung der Einwirkung hochfrequenter Druck- und Temperaturschwankungen auf die Dichtigkeit der Systeme und (3) die Modellierung der (auch chemischen) Prozesse, die bei zyklischen Druckwechseln und thermischer Belastung durch die Injektion und Entnahme von Fluiden auftreten. Dabei sollten numerische Modelle zur Vorhersage des Langzeitverhaltens entwickelt werden. Die Arbeiten stellen notwendige Grundlagen für ein verbessertes Prozessverständnis dar und tragen dazu bei, die Dichtigkeitsentwicklung der technischen Untertageinstallation unter zyklischen Belastungen abzubilden und wenn möglich praktische Empfehlungen auf Basis der durchgeführten Experimente und Modellierungen zu erarbeiten.

2.1.1 Technikumsausstattung und Durchführung der Experimente

Der Bohrlochsimulator Typ I (Abbildung 46, Abbildung 47) eignet sich zur Untersuchung zementverfüllter Stahlcasings hinsichtlich ihrer Durchlässigkeitsänderung bei zyklischen Druck- und Temperaturschwankungen. Die Anlage besteht im Wesentlichen aus einer oberen Kammer, einer unteren Kammer und einem zementverfüllten Stahlcasing zwischen diesen Kammern.





Abbildung 46: Schematische Zeichnung des Autoklavensystems Typ I. Als Gas wurde in allen Versuchsreihen Stickstoff (technische Reinheit) verwendet.

Abbildung 47: Bohrlochsimulator Typ I, ohne Isolierung. Orange Heizmatten sind sichtbar. Gesamtaufbau ca. 3 m hoch.

Um Druckschwankungen im Gasspeicher zu simulieren, kann Druck in der Anlage abgelassen und wiederaufgebaut werden. Analog dazu kann die Temperatur über die Temperaturregelung der Heizmatten variiert werden. Eine Steuerung der Temperatur ist auf 1 °C genau regelbar und für jede der 7 Heizmatten individuell einstellbar, um i.d.R. geringe bzw. vorgegebene Temperaturgradienten einstellen zu können.

Die durchgeführten Versuchsreihen bestanden jeweils aus 4 Phasen:

- 1. Zementation des Casings und Aushärten des Zements. Das Casing wurde nicht mehr bewegt, bis der Zement ausgehärtet war.
- 2. Versuche zur Bestimmung von Mineralogie (Carbonatgehalt einzeln), Korndichte, Wassergehalt, Porenanteil, Porosität und Permeabilität am Zementstein an Initialproben, zeitgleich zum Einbau des Casings (s. Anlage 2). Die Bestimmung von Suspensionsdichte, Ausbreitmaß und Luftporengehalt der Zementsuspension wurde an Rückstellproben bestimmt. Die Zementproben wurden detailliert untersucht und z.B. die einzelnen Mineralphasen bestimmt.
- 3. Versuche zur Durchlässigkeit des Zement-Stahl-Verbundes nach Druck- und/oder Temperaturschwankungen. Die Versuche zur Durchlässigkeit wurden bei allen Casings bei 60 bar und 70 °C durchgeführt, falls nicht anders vermerkt. Hierbei wurde bei ausgeglichenem Druck in der gesamten Anlage die Verbindung zwischen oberer und unterer Kammer getrennt und aus der oberen Kammer Gas abgelassen, sodass der Druck um ca. 3 bar reduziert wurde. Der Druck in der unteren Kammer wurde konstant gehalten und Gas strömte von der unteren Kammer über das zementierte Casing in die obere Kammer. Der Druckanstieg in der oberen Kammer wurde aufgezeichnet und daraus die Durchlässigkeit des Verbundes Zementstein-Casing abgeleitet. Nach diesen Durchlässigkeitsversuchen wurde eine Druck- und/oder

Temperaturschwankung durchgeführt und mit dem darauffolgenden Versuch überprüft, wie sich diese zyklische Belastung auf die Dichtigkeit des zementierten Casings ausgewirkt hat.

4. Versuche zur Alteration des Zementsteins (Untersuchungsprogramm analog zu Punkt 2), Vergleich zwischen Blindproben und dem Zementstein im Casing, unmittelbar nach dem Ausbau des Casings.

Es wurden insgesamt 4 Casings untersucht, die sich in folgenden Punkten unterscheiden:

- -Casing 0: Hierbei handelt es sich um ein über 3 Jahre altes Casing aus dem COBRA-Projekt (Schilling et al., 2015; 2016), das bereits Druck- und Temperatur-Schwankungen ausgesetzt wurde. Bei den vorherigen Versuchen wurden CO₂ und salinare Fluide statt Stickstoff verwendet. Diese Versuche wurden auch genutzt, um das Modell zum reaktiven Stofftransport zur Beschreibung der Zementalteration zu validieren.
- -Casing 1: Der Zement härtete 6 Monate aus.
- -Casing 2: Der Zement härtete 28 Tage aus.
- Casing 3: Der Zement h\u00e4rtete 28 Tage aus. Die Zunderschicht auf der Innenseite des Casing wurde durch Sandstrahlen entfernt.

2.1.2 Modell

Zur Auswertung der Versuche wurde ein Finite-Differenzen Modell in Python erstellt. Ein Versuch begann damit, dass die Verbindung beider Kammern getrennt und aus der oberen Kammer wie beschrieben Gas abgelassen wird. Für die Auswertung wurde der Zeitpunkt als $t_0 = 0$ s bezeichnet, bei der der Druck in der oberen Kammer den geringsten Wert annahm (direkt, nachdem der Druck abgelassen wurde, aber noch unmittelbar vor dem Wiederanstieg des Drucks).

Bei der Modellierung wurden ausschließlich normierte Druckwerte der oberen Kammer verwendet, wobei die Normierung anhand der folgenden Gleichung erfolgte:

$$P_{norm,t} = \frac{P_t - P_{min}}{P_{max} - P_{min}}$$

 $P_{norm,t}$ ist hierbei der normierte Druck zum Zeitpunkt t, P_t der absolute Druck zum Zeitpunkt t, P_{min} der absolute minimale Druck während des Versuchs und P_{max} der absolute maximale Druck während des Versuchs. P_{min} entsprach stets dem Druck zum Zeitpunkt t_0 , da der Druck direkt nach dem Ablassvorgang immer am niedrigsten war, danach stieg er an. P_{max} entsprach dagegen im Idealfall dem Druck vor dem Druckablass und nach dem vollständigen Wiederanstieg. In realen Versuchen gab es hier leichte Variationen.

Der normierte Druck entspricht dem prozentualen Wiederanstieg. Ein normierter Druck von 0,4 bedeutet, dass zu diesem Zeitpunkt 40 % des abgelassenen Drucks in der oberen Kammer wiederaufgebaut wurden.

Das konzeptionelle Modell besteht aus den folgenden Komponenten:

- Untere Kammer: Als Randbedingung wurden die Viskosität und Kompressibilität des Gases für einen konstanten Druck von 60 bar festgelegt. Bei diesem Druck wurden alle Versuche durchgeführt.
- Obere Kammer: Als Randbedingung wurde hier ein normierter Druck von 0 zum Zeitpunkt t₀ festgelegt.
- Ringspalt: Der Umfang b betrug ca. 38 cm, die Öffnungsweite des Ringspalts h lag im μm-Bereich. Der innere Umfang und der äußere Umfang wichen prozentual daher kaum voneinander ab. Daher wurde der Ringspalt im Modell nicht als dreidimensionaler Zylindermantel, sondern vereinfacht als Quader modelliert. Dessen Höhe (bzw. Länge des

Ringspalts *I*) betrug 2 m, während sich die Grundfläche aus einer 38 cm breiten Seite und einer Spaltweite (variabler Parameter) zusammensetzte.

Das Modell basiert auf der Gleichung von Hagen-Poiseuille für den Volumenstrom durch einen rechteckigen Strömungskanal ("cube law").

$$\dot{V} = \frac{K h^3 b}{12 \eta l}$$

 \dot{V} ist hierbei der Volumenstrom, bei *K* handelt es sich um einen Korrekturfaktor, der in allen hier betrachteten Fällen bei nahezu 1 liegt. η bezeichnet die dynamische Viskosität des durchströmenden Fluids (hier Stickstoff).

Nur die Ringspaltöffnungsweite wurde zur Anpassung der modellierten Kurve an die Messwerte verwendet. Das Modell wurde im Verlauf der Versuchsreihe von Casing 1 erweitert, da ein parallel ablaufender Prozess beobachtet wurde, der sich durch einen permeablen Zementstein beschreiben lässt ("Lead Zement"). im oberen Teil des Zementsteins wurde deshalb ein permeabler Bereich in das Modell integriert. Für den Zementstein konnte so eine Permeabilität und Porosität zusätzlich eingestellt werden. Der permeable Bereich reichte nur wenige dm von der Oberkante des Zementsteins ("Lead Zement"). Diese Tiefe wurde, wie in Abbildung 48 dargestellt, bei 50 cm festgehalten.



Abbildung 48: Schematische Darstellung des permeablen Bereichs in den oberen 50 cm des Zementsteins.

Die Permeabilität K ist wie folgt definiert ("Darcy-Gesetz"):

$$\dot{\mathbf{V}}_D = \frac{Q \ \eta}{A} \frac{dl}{dP}$$

 \dot{V}_{D} ist der "Darcy"- Volumenstrom, A ist die durchströmte Querschnittsfläche, bei *dl/dP* handelt es sich um den Druckgradienten.

Abbildung 49 zeigt beispielhaft eine Modell-Anpassung an Messdaten.



Abbildung 49: Anpassung der grünen Kurve an die schwarzen Messpunkte. Zur Anpassung variierbare Parameter sind ebenfalls abgebildet, allerdings wurden bei den meisten Versuchen nur die Ringspaltöffnungsweite (annular gap) und die Permeabilität bei bekannter Porosität variiert.

2.1.3 Ergebnisse Autoklav Typ I (KIT-IG)

2.1.3.1 Casing 0

Casing 0 war von Beginn an durchlässiger als andere Casings. Dies hängt vermutlich damit zusammen, dass es bereits vor Beginn der Versuchsreihe zyklischen Druckschwankungen ausgesetzt war. Während der ersten 8 Versuche wurden lediglich Durchlässigkeitsversuche ohne Schwankung durchgeführt, wobei die Durchlässigkeit (und damit der modellierte Ringspalt) annährend konstant blieb (Abbildung 50). Mit den ersten Druckschwankungen ergab sich eine Vergrößerung des modellierten Ringspalts. Nach Temperaturschwankungen kam es teilweise ebenfalls zu einer Vergrößerung des Ringspalts, allerdings weniger extrem als in den vorhergehenden Fällen und nur bei 2 Versuchen. Anschließend stellte sich trotz Druckschwankungen eine Sättigung ein. Druck- und Temperaturschwankungen lassen sich hier weniger sauber trennen als in den späteren Versuchsreihen, da die Anlage zu Beginn der Versuche nicht völlig dicht war. Daher kam es teilweise zu unterschiedlich starken, ungeplanten Druckschwankungen. Die Druckschwankung vor Versuch 9 (also beim ersten Anstieg der Undichtigkeit) betrug z.B. 40 bar, da die Anlage über ein Wochenende massiv Druck verloren hatte. Die Druckschwankungen unmittelbar danach lagen im Bereich von 20 bar. Erst am Ende der Versuchsreihe wurden geplante Schwankungen von 60 bar durchgeführt. Während der Einfluss der Temperaturschwankungen nicht besonders deutlich ist, scheinen größere Druckschwankungen die Dichtigkeit nachhaltig zu verringern, bis ein Sättigungseffekt eintritt.

2.1.3.2 Casing 1

Die modellierte Ringspaltöffnungsweite des ersten auswertbaren Versuchs von Casing 1 betrug 7 μ m (24 μ m bei Casing 0). An Casing 1 wurden hauptsächlich die Auswirkungen von Druckschwankungen untersucht (Abbildung 51). Besonders die anfänglichen Druckschwankungen bewirkten eine massive Abnahme der Dichtigkeit. Bei Versuchen ohne vorhergehende Schwankung veränderte sich die Durchlässigkeit nicht wesentlich. Wie bei Casing 0 stellte sich nach einigen Zyklen eine Sättigung ein. Neben den in Abbildung 51 dargestellten Versuchen gab es einige Versuche (hauptsächlich Nr. 1 – 7), die aufgrund der anfänglich hohen Dichtigkeit des Systems vor der ersten Druckschwankung nicht ausgewertet werden konnten.



Abbildung 50: Entwicklung des modellierten Ringspalts von Casing 0



Abbildung 51: Entwicklung des modellierten Ringspalts von Casing 1

Bei den ersten 16 Versuchen ist stets ein steiler Anstieg im Anfangsbereich der Kurve erkennbar, der über die Modellierung als poröser permeabler "Lead-Zement" ausgewertet wurde (Abbildung 52).



Abbildung 52: Rohdaten aus Versuch 16 von Casing 1. Innerhalb von 500 Sekunden stieg der Druck auf 30 % an, was im Vergleich zum restlichen Anstieg wie eine nahezu senkrechte Linie wirkt.

Bei ca. 30 % des normierten Drucks flachte die Kurve in allen Fällen stark ab, auch unabhängig davon, wie viel Druck oben abgelassen wurde. Der relativ konstante Wert von 30 % führt zur Folgerung, dass das permeable angebundene Volumen nahezu konstant ist. Dabei konnte es sich nur um einen Einfluss des oberen Zementsteins handeln ("Lead Zement"), da aus der unteren Kammer während des steilen Anstiegs kein Gas entzogen wurde. Das den Anstieg speisende Volumen muss ca. 41 % des zu speisenden Volumens (Volumen der oberen Kammer) betragen. Schläuche und ähnliche hohle Volumina konnten dafür ausgeschlossen werden, zudem erfordert der erste rasche Druckanstieg (wenige Minuten) eine entsprechend niedere Permeabilität. Lediglich der Porenraum des Zements verbleibt deshalb als Ursache für diesen raschen Anstieg. Wäre der gesamte Porenraum des Zements hoch permeabel, würde die Kurve nach dem steilen Anstieg nicht abflachen. Berücksichtigt man das notwendige Volumen für einen Anstieg um 30 % und die gemessene Porosität sowie das Volumen des Zementkörpers, ergibt sich eine berechnete Länge von 50 cm hochpermeable Zementsäule im Casing. Bei einem Versuch, bei dem 3 bar (von ursprünglich 60 bar) aus der oberen Kammer abgelassen werden, käme es nach der genannten Modellvorstellung zu folgenden Prozessen:

 Der Druck innerhalb der oberen Kammer (V_{OK}) steigt innerhalb von Minuten von 57 bar auf 57,9 bar an. Das Gas entstammt dem oberen Porenraum des Zements (V_{PZ}), in dem der Druck von 60 bar auf 57,9 bar fällt, um den Druck in der oberen Kammer zu erhöhen. Dabei gilt:

$$V_{PZ} = V_{OK} \times 0.41$$

2. Der restliche Druckausgleich findet über den Ringspalt statt, durch den Gas von der unteren in die obere Kammer fließt. Parallel dazu steigt der Druck in den permeablen oberen 50 cm des Zementsteins wieder an.

Dieser permeable Bereich wurde in das mathematische Modell übernommen. Neben der Ringspaltöffnungsweite kann nun auch die Permeabilität dieses Bereichs zur Anpassung der Kurve eingestellt werden. Porosität und Tiefe des hochpermeablen Bereichs können zur Anpassung der Kurve variiert werden. Da beide Werte unabhängig von der Modellierung bestimmt werden können, wurden sie in den hier beschriebenen Versuchen bei 37 % für die Porosität und 50 cm für die Länge des permeablen Bereiches festgesetzt.

Diese Veränderungen am Modell ermöglichten es, die Kurve auch an den steilen Anstieg zu Beginn der Versuche 1 – 16 anzupassen. Außerdem verbesserte sie die Anpassung der darauffolgenden Versuche,

obwohl bei diesen der steile Anstieg nicht mehr deutlich sichtbar war. Dies liegt vermutlich hauptsächlich daran, dass der zum steilen Anstieg führende Effekt in der ab Versuch 17 schneller steigenden Druckkurve vom Druckausgleich durch den Ringspalt überlagert wird, aber noch immer den Verlauf des Anstiegs in der oberen Kammer beeinflusst.

2.1.3.3 Casing 2

An Casing 2 wurden einige Druckschwankungen mit demselben Ergebnis wie bei Casing 1 durchgeführt: Druckschwankungen führten hauptsächlich zu einer permanenten Erhöhung der Durchlässigkeit, bis sich eine Sättigung einstellte. An Casing 2 wurden jedoch hauptsächlich die Auswirkungen von Temperaturschwankungen getestet. Diese schienen die Durchlässigkeit zu verringern, der modellierte Ringspalt war unmittelbar nach einer Temperaturschwankung oft verkleinert. Allerdings war diese Verringerung der Durchlässigkeit nur temporär. Es wurden nach Temperaturschwankungen häufig einige Durchlässigkeitsversuche ohne Druckschwankungen durchgeführt (Abbildung 53), bei denen die Durchlässigkeit stetig anstieg bzw. der modellierte Ringspalt wieder weiter geöffnet schien.



Abbildung 53: Entwicklung des modellierten Ringspalts von Casing 2

Die Temperaturschwankungen wurden dadurch simuliert, dass die Heizmatten nachmittags abgeschaltet und am nächsten Morgen wieder eingeschaltet wurden. Ca. 24 Stunden später wurde dann ein Durchlässigkeitsversuch durchgeführt. Da die Heizmatten innerhalb weniger Minuten die eingestellte Temperatur erreichen, sollten Stahl und Zement im Laufe dieses Tages ebenfalls die eingestellte Temperatur angenommen haben. Sollte dies nicht der Fall sein, könnten Temperaturunterschiede zwischen Stahl und Zementstein dazu führen, dass der Ringspalt tatsächlich temporär verengt wird und so die Durchlässigkeit des Systems kurzzeitig sinkt. Hierfür müsste jedoch der folgende unwahrscheinliche Fall (Szenario 1) angenommen werden:

- Beim Abkühlen müsste das Stahlcasing stark abkühlen, der Zementstein jedoch kaum. Das Casing würde sich zusammenziehen und so den Ringspalt verkleinern, während sich der Zementstein deutlich weniger zusammenzieht und dadurch den Ringspalt nur leicht vergrößert.
 - Alternativ könnte der Zementstein auch einen deutlich kleineren Wärmeausdehnungskoeffizienten als der Stahl besitzen. Dann würde sich der
Zementstein auch bei starker Abkühlung nicht so stark zusammenziehen, dass er die Ringspaltverengung durch das Zusammenziehen des Stahls kompensieren könnte. Der Ausdehnungskoeffizient von Casingstahl liegt üblichwerweise bei $13 \times 10^{-6} \, ^{\circ}C^{-1}$, der von typischen Bohrlochzementen bei $9-10 \times 10^{-6} \, ^{\circ}C^{-1}$ (Bu et al., 2017). Ein Unterschied ist also vorhanden, aber gering. Realistischer ist daher eine Kombination aus beiden genannten Mechanismen.

- Beim Aufheizen müsste das Casing dann zum Zeitpunkt des Versuchs noch nicht die angestrebte Temperatur von 70 °C erreicht haben und im Vergleich zu den Versuchen ohne Temperaturschwankungen etwas dichter am Zementstein anliegen. Wie oben geschildert müsste sich der Zementstein entweder durch Wärmespeicherung oder einen geringen Wärmeausdehnungskoeffizienten beim Abkühlen nicht stark zusammengezogen haben, denn beim Aufheizen wird erwartet, dass sich der Zementstein innen später ausdehnt als das Casing, an dem die Heizmatten direkt anliegen.
- Die Kombination aus noch nicht voll ausgedehntem Casing und kaum zusammengezogenem Zementstein würde eine Verengung des Ringspalts bewirken. Diese Verengung würde mit der Zeit nachlassen, indem sich das Casing weiter aufheizt und ausdehnt.

Dies ist unwahrscheinlich, da die Heizmatten direkt am Casing anlagen und die Wandstärke lediglich 1 cm betrug. Nach 24 Stunden kann daher davon ausgegangen werden, dass das Casing wieder 70 °C erreicht hat. Dies trifft vermutlich zu, da Versuch 40 nach einer Temperaturschwankung durchgeführt wurde, bei der das Casing 104 Stunden zum Temperaturangleich hatte. Dennoch nahm bei Versuch 40 die modellierte Ringspaltbreite im Vergleich zu Versuch 39 wie bei anderen Temperaturschwankungen ab.

Hätten sich die Temperaturen von Stahl und Zementstein noch nicht völlig angeglichen, scheint folgendes Szenario 2 realistischer:

- Beim Abkühlen kühlt der Zementstein langsamer ab als der Stahl.
- Beim Aufheizen erreicht der Stahl jedoch rasch die 70 °C, der Zementstein noch nicht.
- Dadurch ist der Ringspalt bei anfänglichen Versuchen etwas erweitert, die Durchlässigkeit steigt.

Da dies jedoch den Beobachtungen widerspricht, spielt Materialausdehnung wahrscheinlich eine untergeordnete Rolle.

Im COBRA-Projekt (Schilling et al., 2015; 2016) wurde bereits nachgewiesen, dass Wasser den Ringspalt für den Gasdurchlass blockieren und so die Durchlässigkeit verringern kann. Es ist daher denkbar, dass die temporär erhöhte Dichtigkeit nicht auf eine tatsächliche Verkleinerung des Ringspalts zurückgeht, sondern auf Wasser im Ringspalt. Bei der Versuchsanlage handelt es sich um ein geschlossenes System, solange kein Gas manuell abgelassen oder zugeführt wird. Bei einem Abkühlen des Systems könnte sich Kondenswasser bilden, da die Wasserdampfsättigungskonzentration mit sinkender Temperatur exponentiell abnimmt. Ob dies möglich ist hängt davon ab, wie feucht die Luft in der Anlage ist. Beim Aufheizen könnte das im Ringspalt angesammelte Wasser zunächst nur teilweise und über eine längere Zeitspanne völlig verdampfen. Dies würde erklären, wieso die Durchlässigkeit nach Temperaturschwankungen wieder langsam anstieg, obwohl währenddessen nur Durchlässigkeitsversuche ohne Schwankungen durchgeführt wurden. Das Wasser könnte auch aus Dehydratationsreaktionen stammen.

Teilweise entwich etwas Wasser beim Druckablassen in der oberen Kammer. Diese zweite, unabhängige Beobachtung zeigte, dass etwas Wasser in der Anlage freigesetzt wurde. Als Ursache kamen dabei vor allem der Dehydratationsreaktionen des Zementsteins oder freies Wasser im Zementstein in Frage.

Der erste Versuch von Casing 2 war bereits gut auswertbar und ergab eine Ringspaltöffnungsweite von 20,5 µm. Ausgehend von den auswertbaren Versuchen liegt ca. der Faktor 3 zwischen der Ringspaltöffnungsweite der ersten Versuche von Casing 1 und 2, wobei die nicht auswertbaren Versuche von Casing 1 noch deutlich geringere Werte liefern müssten (der Druckanstieg war so langsam, dass er nicht sicher auswertbar war). Selbst dieser Faktor 3 in der Ringspaltweite bewirkt einen Faktor 27 in der Durchlässigkeit ("cube law"): Casing 2 war also von Beginn an deutlich undichter als Casing 1. Als einziger Parameter wurde bei den beiden Casings die Aushärtezeit des Zements variiert. Diese betrug 6 Monate bei Casing 1 und 28 Tage bei Casing 1. Eine verlängerte Aushärtezeit vor der ersten Druckschwankung führt demnach zumindest für diesen Zement und diese Zeiträume zu einer deutlichen Erhöhung der Dichtigkeit.

2.1.3.4 Casing 3

Der Zement in Casing 3 härtete wie bei Casing 2 genau 28 Tage aus, bis der erste Versuch gestartet wurde. Allerdings wurde vor der Zementation das Innere des Casings mit einem Sandstrahler behandelt. Bei Casing 0, 1 und 2 befand sich zum Zeitpunkt der Zementation eine Schicht aus Eisenoxiden (Zunder) auf der Innenseite (Abbildung 54). In Abbildung 55 ist diese entfernt, die Oberfläche ist zudem rauer als vor der Behandlung.



Zunderschicht auf der Innenseite ist intakt.



Abbildung 54: Casing 3, Innenseite unbehandelt. Die Abbildung 55: Casing 3, Innenseite sandgestrahlt. Die Zunderschicht ist entfernt, aufgerauter Stahl ist nun sichtbar.

Zunächst wäre zu erwarten, dass Casing 3 zu Beginn der Versuchsreihe weniger dicht als Casing 1 ist, da der Zement in Casing 3 so lange aushärtete wie im vergleichsweise undichten Casing 2. Dies ist jedoch nicht der Fall, der erste Versuch von Casing 3 ergab eine modellierte Ringspaltöffnungsweite von 7 µm, ebenso wie der erste auswertbare Versuch von Casing 1 (obgleich Casing 1 wie beschrieben zu Beginn der Versuchsreihe so dicht war, dass die Versuche nicht ausgewertet werden konnten). Casing 3 war somit von Beginn an deutlich dichter als Casing 2. Der einzige Unterschied zwischen den Casings war die Behandlung der Innenseite. Daraus lässt sich ableiten, dass das Sandstrahlen zu einer Erhöhung der anfänglichen Dichtigkeit des zementierten Casings führt. Hierbei könnten zwei Faktoren von Bedeutung sein:

1. Die Zunderschicht könnte nicht fest mit dem darunterliegenden intakten Stahl verbunden gewesen sein. Liegt Zementstein direkt an der Zunderschicht an, könnte sich die Zunderschicht vom Stahl lösen und ein Ringspalt gebildet werden. Da die Zunderschicht beim Öffnen der Casings nicht am Zement haftete, wird davon ausgegangen, dass die Zunderschichten während der Versuche an den Innenseiten der Casings verblieben. Eine Spaltbildung zwischen Zunder und Stahl ist unwahrscheinlich, da die Zunderschicht stark am Stahl haftete.

2. Das Aufrauen der Casing-Innenseite führte vermutlich zur besseren Anhaftung des Zements.

Während durch das Sandstrahlen die Dichtigkeit im Inneren des Casings erhöht werden kann, lässt sich daraus zudem eine Handlungsempfehlung für die Außenseite ableiten. Auch hier wird ein Aufrauen der Oberfläche vermutlich zu einer Erhöhung der Dichtigkeit führen. Casings sind außen zudem häufig von Rost bedeckt. Diese Schicht haftet deutlich weniger stark am intakten Stahl als die Zunderschicht, sodass es hier zum im letzten Abschnitt unter Punk 1 beschriebenen Effekt kommen könnte. Ein Ringspalt wird sich zwischen den Komponenten bilden, die am wenigsten stark aneinanderhaften. Eine angeraute, von Rost befreite Oberfläche bietet hierfür weniger Angriffsmöglichkeiten als eine glatte, von Rost überzogene Oberfläche.

Dies kann als Ansatzpunkt für weitere Untersuchungen dienen. Verschiedene Profile auf der Außenund Innenseite des Casings könnten sich unterschiedlich auf die Dichtigkeit auswirken. Hierbei muss jedoch auch die Wirtschaftlichkeit beachtet werden. Ein komplexes Profil in ein Casing z.B. einzufräsen bzw. anzubringen kann vergleichsweise hohe Zusatzkosten verursachen. Casings mit einem Sandstrahler zu behandeln verursacht dagegen einen verhältnismäßig geringen Mehraufwand und führt zu einer signifikanten Verbesserung des Casing-Zement Interfaces.

2.2 Technikumsexperimente mit dem Bohrlochsimulator Typ II (KIT-TP)

Das Autoklavensystem Typ II hatte ursprünglich einen vergleichbaren Aufbau wie Typ I. Der wesentliche Unterschied bestand in der Probendimesion: Mit einer Länge von 1,08 m waren die Proben zwar deutlich kürzer, der Durchmesser von 0,6 m war jedoch auf Gesteinsproben und nicht nur auf Casings ausgelegt. Analog zu Typ I war und ist die Anlage über Heizmatten temperierbar.

Diese Anlage wurde umgebaut, um realistische Spannungs- und Porendruckverhältnisse im Untergrund abzubilden. Über ein Hydrauliksystem ist es möglich, in axialer Richtung eine Spannung von bis zu 120 bar aufzubauen (Axial Pressure). Zudem ist die Probe nun von einem Gummimantel umschlossen, auf den von außen ein Manteldruck von bis zu 80 bar wirken kann (Confining Pressure). Porendrücke von bis zu 70 bar sind möglich. Durch den Umbau verringerte sich der Probendurchmesser auf 0,56 m.



Abbildung 56: Bohrlochsimulator Typ II. Rechts im Bild: Versuchsstand mit Autoklavensystem ohne Isolierung. Im Bereich zwischen den Zugstangen befindet sich die Probe, die durch einen Stahlmantel und eine orange Heizmatte verdeckt ist. Darüber und darunter liegen die beiden Autoklavenkammern. Links im Bild: Gasflaschen und Steuereinheit.

Zunächst wurde die Anlage mit einer Schilfsandsteinprobe ohne Bohrung getestet (Abbildung 57).



Abbildung 57: Schilfsandsteinprobe

An dieser Probe wurden verschiedene Durchlässigkeitsversuche durchgeführt. Die Temperatur lag stets bei 20 °C, der Druck in der oberen und unteren Kammer lag zu Beginn jedes Versuchs bei 10 bar. Wie bei Typ I wurde aus der oberen Kammer Gas abgelassen und in der unteren Kammer ein konstanter Druck gehalten, sodass Gas von unten nach oben durch die Probe strömte. Variiert wurden

Confining Pressure und Axial Pressure. Hierbei wurden bei jedem Druckverhältnis 2 - 5 Versuche zur besseren Vergleichbarkeit durchgeführt. Folgende Druckverhältnisse wurden getestet:

- Axialer Pressure : 22 bar, Confining Pressure: 20 bar
- Axialer Pressure : 22 bar, Confining Pressure: 40 bar
- Axialer Pressure : 40 bar, Confining Pressure: 40 bar
- Axialer Pressure : 40 bar, Confining Pressure: 60 bar
- Axialer Pressure : 40 bar, Confining Pressure: 62 bar
- Axialer Pressure : 76 bar, Confining Pressure: 62 bar
- Axialer Pressure : 60 bar, Confining Pressure: 62 bar

Nach ca. 300 Sekunden war der Druck bei den meisten Versuchen wieder ausgeglichen. Zwischen Versuchen mit gleichen Druckverhältnissen gab es ähnlich große Abweichungen wie zwischen Versuchen mit verschiedenen Druckverhältnissen. Die Durchlässigkeit des Sandsteins hängt im Rahmen der Messgenauigkeit nicht von der Magnitude des "Axial" und "Confining Pressure" ab.

Die unabhängig gemessene Gaspermeabilität an kleinen Proben beträgt 2,7 × 10^{-14} m². Modifiziert man das oben genannte Modell von Typ I hinsichtlich Kammervolumen und Probenmaß, setzt den Ringspalt auf 0 µm und weist der Probe eine Permeabilität und Porosität über die gesamte Länge zu, erhält man modellierte Permeabilitäten zwischen 5 × 10^{-15} m² und $10 × 10^{-15}$ m². Für eine optimale Anpassung sind Porositäten im Bereich von 5 – 10 % notwendig. Diese Werte sind möglich, jedoch für einen Reservoir-Sandstein gering. Für den schlecht sortierten Schilfsandstein (Stuttgart-Formation) mit erheblichem organischen Material sind geringe (offene) Porositäten zu erwarten.

Eine Undichtigkeit der Anlagen ist denkbar, würde jedoch beim Typ II Autoklav zu einer erhöhten und nicht zu einer verringerten Permeabilität führen. Eine mögliche Erklärung sind Heterogenitäten bzw. ein anisotropes Verhalten in der Probe. Die Proben zeigen bereits optisch Heterogenitäten und Sedimentationsstrukturen, die auf eine makroskopische Anisotropie hindeuten. Darüber hinaus scheint es denkbar, dass durch die Bearbeitung der kleineren Proben im randlichen Bereich Feinstmaterialien (Tone, Feinsand) ausgespült wurden. Dieser Effekt würde bei großen Proben, aufgrund des geänderten Verhältnisses von Oberfläche zu Volumen, geringer ausfallen.

Es war geplant, eine Opalinuston-Probe (sandige Fazies) zu untersuchen. Diese wurde aus dem Felslabor Mont Terri in der Schweiz beschafft und von einem Steinmetz weiterbearbeitet. Aufgrund der COVID-19-Pandemie musste die Probe deutlich länger als geplant gelagert werden, weshalb die Probe zum Zeitpunkt des Empfangs am KIT deutlich ausgetrocknet war. Beim Aufstellen der Probe zur Zementation öffnete sich daher eine Schichtfuge, sodass die Probe nicht mehr messbar war (aufgrund der Undichtigkeit, Abbildung 58). Eine Ersatzbeschaffung war aus zeitlichen Gründen nicht mehr möglich.

Zudem wurde eine Salzprobe gefertigt (Abbildung 58), bisher konnten dabei noch keine Permeabilitäten gemessen werden. Die Probe wird nun genutzt werden, um die Dichtigkeit der Anlage zu testen und anschließend die Dichtigkeit des Verbunds Zementation-Salz zu untersuchen. Damit kann nach einem notwendig gewordenen Umzug der Anlage die Funktion der Anlage nach dem Wiederaufbau getestet und weitere Informationen können gewonnen werden.



Abbildung 58: Links: Defekte Tonsteinprobe, rechts: Fertigung der Salzprobe

2.3 THC-Modellierungen zur Dichtigkeit der Bohrlochzementation im Verbund Stahl – Zement

Die THC-Modellierungen in Arbeitspaket Mod-1 wurden von der Arbeitsgruppe Ingenieurgeologie des KIT (KIT-IG) auf Basis experimenteller Daten aus dem ehemaligen Projekt COBRA zur geologischen CO₂-Speicherung (Schilling et al. 2015; 2016) durchgeführt. Für die Speicherung von Gasen (z.B. CO₂, Erdgas) im Untergrund ist die Sicherstellung der Dichtigkeit von Bohrungen dringend erforderlich, sowohl über die Zeitdauer der Nutzung als auch nach Abdichtung der Bohrung. Wesentliche Zielsetzung des Projektes COBRA war die Untersuchung von chemischen Prozessen innerhalb des komplexen Systems aus Stahlbauteilen, Zementation, Gesteinsformation, Fluid- und Gasphasen im Bereich abgedichteter Bohrungen sowie die Entwicklung verschiedener Versuchsaufbauten. Der dort gewonnene Datensatz eignete sich in besonderer Weise, um neben den thermisch-hydraulischen Modellierungen zusätzlich Alterations-Reaktionen zu untersuchen (THC-Modellierung).

Der im COBRA-Projekt entwickelte Versuchsaufbau zur Untersuchung von Bohrlochverschlüssen im Realmaßstab besteht im Wesentlichen aus zwei Kammern (Autoklaven), die durch ein zementiertes Stahlrohr (Casing) von 2 m Länge miteinander verbunden sind. Abweichend zu den Versuchen im Arbeitspaket Exp-1 war die untere Kammer mit einem Wasserkreislauf versehen, um Alterationsprozesse im Verbund Zement-Stahl-Gestein durch Interaktion mit CO₂-reichen Fluiden untersuchen zu können. Durch Anlegen eines Druckgradienten durch entsprechende Druckregelung in beiden Kammern können auftretende Transportprozesse entlang des zementierten Stahlrohrs im Detail untersucht werden.

2.3.1 Thermisch-hydraulische-Simulationen von Permeabilitätstests zur Untersuchung des Verbunds Zement-Stahl (KIT-IG)

Wesentliches Ziel der zunächst durchgeführten thermisch-hydraulischen (TH)-Simulationen der Technikumsexperimente war es, ein besseres Verständnis des Fließverhaltens entlang des zementierten Stahlrohrs im betrachteten Bohrlochsimulator zu erlangen. Dieser Arbeitsschritt erwies sich als essentiell für das Aufsetzen eines gekoppelten thermisch-hydraulisch-chemischen (THC) Modells. Die Basis der TH-Simulationen bildeten dabei experimentelle Daten von Permeabilitätstests aus dem COBRA-Projekt, die bei einem Systemdruck von ungefähr 8 MPa und einer Temperatur von 70 °C durchgeführt wurden. Die Ergebnisse der TH-Modellierungen wurden bereits im Journal *"Transport in Porous Media"* veröffentlicht (Klose et al. 2020).

Die experimentelle Durchführung der Permeabilitätstests begann mit kurzzeitiger Öffnung des Auslassventils an der oberen Kammer zur Absenkung des Systemdrucks. Nach erneutem Schließen des Ventils wurde der Wiederanstieg des Drucks in der oberen Kammer kontinuierlich aufgezeichnet. Dieses Vorgehen wurde in Form von mehreren Zyklen wiederholt. Innerhalb weniger Minuten erfolgte jeweils ein vollständiger Druckausgleich, verursacht durch Migration des CO₂-reichen Fluids durch das zementierte Stahlrohr. Dieses Testverfahren ist im Wesentlichen vergleichbar mit sogenannten *Bleed-Down/Build-Up Tests* (BB-Tests), die in der Anwendung für die Untersuchung des *Sustained Casing Pressure* (SCP) eingesetzt werden. Jeweils nach Beendigung des Experiments wurde das Stahlrohr entnommen und zur Untersuchung des ausgehärteten Zementkerns aufgeschnitten. Während im Innenbereich keine Hinweise auf Fluidmigration erkennbar waren, konnte an der Unter- und Oberseite

sowie den seitlichen Grenzflächen des Zementkerns eine Alterationsfront beobachtet werden (Schilling et al., 2015).

Für die Bestimmung der Permeabilität des zementierten Stahlrohrs und die Berechnung des Fluidtransports wurden insgesamt drei verschiedene semi-analytische Konzeptmodelle (Tabelle 13) aufgesetzt und miteinander verglichen:

- Modell 1 ("Darcy 1"): Der Volumenstrom durch das zementierte Stahlrohr wird mithilfe der Darcy-Gleichung berechnet. Als verfügbare Querschnittsfläche für die Berechnung des Durchflusses wird die gesamte Fläche des zementierten Rohres berücksichtigt. Hierzu wird dem ausgehärteten Zementkern eine sogenannte *effektive Permeabilität* zugewiesen, die ebenfalls Fehlstellen mitberücksichtigt.
- Modell 2 ("Hagen-Poiseuille"): Der Volumenstrom wird mithilfe des Gesetzes von Hagen-Poiseuille berechnet. In diesem Fall wird ein durchgängiger Ringspalt an der Grenzfläche zwischen Zementkern und Stahlrohr angenommen, der eine gewisse Breite besitzt und als präferentieller Fließpfad die Fluidmigration ermöglicht. Für das Konzeptmodell wird zusätzlich angenommen, dass die Fluidmigration im Innern des Zementkörpers aufgrund seiner geringen intrinsischen Permeabilität (1 × 10⁻¹⁷ m²) vernachlässigt werden kann.
- Modell 3 ("Darcy 2"): Der Volumenstrom an der Grenzfläche zwischen Zement und Stahlrohr wird wie auch in Modell 1 mit der Darcy-Gleichung berechnet, der Modellansatz ist aber grundsätzlich mit Modell 2 vergleichbar. Anstatt eines offenen Ringspalts wird ein hochpermeabler Bereich mit konstanter Breite an der Grenzfläche zwischen Stahlrohr und Zement angenommen, der durch eine *spezifische Permeabilität* und *Porosität* gekennzeichnet ist und damit eine im Vergleich zu Modell 2 komplexere Struktur repräsentiert.

Tabelle 13: Gleichungen und modellspezifische Parameter für die Berechnung des Volumenstroms im zementierten Stahlrohr für die Modelle 1,2 und 3. Grau: Zementkern, blau: offener Ringspalt, orange: hochpermeabler und poröser Randbereich.



Für die TH-Simulation der Permeabilitätstests auf Basis der in Abbildung 59 dargestellten Konzeptmodelle wurde eine eindimensionale Modellgeometrie angesetzt. Für die Simulation, d.h. für die Bestimmung des volumetrischen Durchflusses im zementierten Stahlrohr, wurde ein Matlab-Programmcode (Version 9.4) zur Lösung von gewöhnlichen Differentialgleichungssystemen (*ordinary differential equations, ODE*) entwickelt. Als Output der einzelnen Simulationsdurchläufe resultiert eine zeitabhängige Druckentwicklung für jeden Knoten im Modell. Die Kalibrierung erfolgte im Anschluss an die Berechnungsdurchläufe durch Variation der jeweils modell-spezifischen Kalibrierparameter

innerhalb sinnvoller Wertebereiche. Durch die Vielzahl an Modelldurchläufen konnte ein Parametersatz für die beste Anpassung an die experimentellen Daten ermittelt werden (Best-Fit).



Abbildung 59: Darstellung des betrachteten Versuchsaufbaus (COBRA-Bohrlochsimulator) sowie der numerischen Umsetzung der TH-Simulation. Das eindimensionale Modell besteht aus insgesamt 200 Zellen, die durch Knoten miteinander verbunden sind. Der erste Knoten repräsentiert die untere Kammer mit der Randbedingung eines konstanten Drucks (P1). Die obere Kammer wird durch den letzten Knoten repräsentiert (PN+1). Für die Simulation der Druckabsenkung in der oberen Kammer wurde noch ein Zusatzknoten mit Atmosphärendruck (PN+2) in das Modell eingebaut.

Für das Modell 1 ("Darcy 1") wurde die effektive Permeabilität des Zementkerns kalibriert, für Modell 2 ("Hagen-Poiseuille") die Breite des Ringspalts, und für Modell 3 ("Darcy 2") wurde sowohl die spezifische Permeabilität als auch die Breite des hochdurchlässigen Bereichs angepasst. Im letzten Schritt erfolgte der Vergleich der drei Konzeptmodelle hinsichtlich ihrer Genauigkeit bei der Simulation von Druckabfall- und Druckaufbauphasen (Abbildung 60). Für die Beurteilung der Güte der Anpassung wurde die Wurzel des mittleren Fehlerquadrats, der *root mean square error* (RMSE), genutzt. Die experimentellen Daten der im COBRA-Projekt durchgeführten Permeabilitätstests konnten durch Modell 3 und einen durchlässigen Randbereich mit 4,9 µm Breite und einer spezifischen Permeabilität von 2,8 × 10⁻¹² m² am genauesten reproduziert werden (RMSE = 1,766 × 10⁴ Pa). Mit einem RMSE von 1,769 × 10⁴ Pa war die Anpassung an die Messwerte durch Modell 2 bei einer Ringspaltbreite von 5,5 µm nahezu identisch gut, während Modell 1 größere Abweichungen zeigte (RMSE = 2,547 × 10⁴ Pa).

Für die Kalibrierung wurde als zusätzlicher Modellparameter der sogenannte *Valve outflow factor* (VOF) eingeführt. Mithilfe des VOF konnte berücksichtigt werden, dass das genaue Vorgehen bei der Öffnung des Auslassventils nicht bekannt war. Durch zusätzliche Modifikation des Programmcodes wurde Modell 3 ("Darcy 2") darüber hinaus erfolgreich für die Simulation einer ganzen Sequenz an Drucktests genutzt (Abbildung 61). Zudem wurde die Performance des Codes erfolgreich an einem Felddatensatz eines realen Gasspeichers getestet, der von unserem Projektpartner Uniper SE zur Verfügung gestellt wurde. Diese vertraulichen Daten können wir leider hier nicht darstellen, zeigen aber deutlich die Anwendbarkeit unseres Programmcodes. Insgesamt wurde eine sehr hohe Übereinstimmung der modellierten Drücke mit dem Felddatensatz erreicht.



Abbildung 60: Experimentelle und simulierte Daten eines Permeabilitätstests am Bohrlochsimulator. Mithilfe der Konzeptmodelle "Hagen-Poiseuille" und "Darcy 2" konnte insgesamt eine sehr gute Anpassung erreicht werden, jedoch konnten die niedrigen Drücke unmittelbar nach dem Schließen des Ventils nicht vollständig nachgebildet werden.



Abbildung 61: Datensatz einer Sequenz aufeinanderfolgender Permeabilitätstests, die mithilfe des kalibrierten Modells "Darcy 2" simuliert wurden.

2.3.2 THC-Simulation eines Langzeitexperiments zur Untersuchung chemischer Prozesse im System Zement-Stahl-Gestein-CO₂-Fluid (KIT-IG)

Aus Basis der o. g. TH-Simulationen wurde im darauffolgenden Arbeitsschritt ein numerisches Modell zur gekoppelten thermisch-hydraulisch-chemischen (THC) Simulation eines Langzeitexperiments entwickelt. Die Entwicklung des THC-Modells bildet die Grundlage zur Überprüfung der Bohrlochintegrität von Erdgasspeichern unter zyklischer Belastung. Ziel unseres reaktiven Stofftransportmodells war es u. a. die vorhandenen Daten zu verwenden, um das Modell im ersten Schritt vor allem hinsichtlich der im Projekt verwendeten Zementphasen zu testen und anschließend zu validieren. Die Nachbildung der experimentellen Daten lieferte ein vertieftes Verständnis der abgelaufenen reaktiven Transportprozesse unter *in situ* Reservoirbedingungen. Des Weiteren wurde eine detaillierte Beschreibung der chemischen Wechselwirkungen verschiedener Materialien mit dem CO₂-reichem Fluid angestrebt, die maßgeblich an der Entstehung der beobachteten Alterationszone im Zementkern beteiligt waren (Abbildung 62).



Abbildung 62: Ausgehärteter Zementkern (unteres Ende) nach dem Langzeitexperiments mit deutlich sichtbarer Alterationszone (weißer Pfeil) an der Unterseite (Breite etwa 3mm) sowie an den lateralen Grenzflächen des Zementkerns (Breite 1-2 mm). Im inneren Bereich konnten keine Veränderungen durch Transportprozesse festgestellt werden (roter Pfeil).

Das Langzeitexperiment wurde am bereits beschriebenen Versuchsaufbau durchgeführt. Während des Langzeitexperiments war die untere Kammer des Bohrlochsimulators mit einer NaCl-Lösung (Konzentration 50 g/L) befüllt, wobei mithilfe eines Wasserkreislaufs eine stetige Zirkulation des Gas-Wasser-Gemisches gewährleistet wurde. Über ein Ventil an der unteren Kammer des Bohrlochsimulators wurde zu einem definierten Zeitpunkt des Experiments CO₂ injiziert (Abbildung 63). Um die Stabilität einer typischen Reservoirgesteinsformation gegenüber CO₂-reichen Fluiden zu untersuchen, wurden zusätzlich Sandsteinproben in die untere Kammer eingesetzt. Die simulierte dritte Phase des Langzeitexperimentes wurde mit einer Temperaturerhöhung auf etwa 55 °C gestartet (Abbildung 63). Anschließend wurden die Drücke in beiden Kammern durch Injektion von N₂ (obere Kammer) bzw. CO₂ (untere Kammer) erhöht, woraufhin der Zieldruck von etwa 60 bar dann für mehrere Tage gehalten wurde.



Abbildung 63: Randbedingungen des reaktiven Stofftransportmodells: Temperatur des Gesamtsystems (schwarz) sowie gemessene Drücke in der oberen (blau) und der unteren Kammer (rot). Der Beginn der Simulation ist nach 50 Tagen (Phase 3 des Langzeitexperiments). Die CO₂-Injektion in das Fluid der unteren Kammer erfolgte nach Erreichen der Zieltemperatur. Die blauen gestrichelten Linien markieren jeweils Fluidzugaben.

Für die Zementation des Stahlrohrs wurde ein Tiefbohrzement Class G mit zugesetztem Quarzmehl verwendet (Schilling et al., 2015). Die Aushärtung im Bohrlochsimulator vor dem Beginn des Experiments erfolgte über eine Zeitspanne von acht Tagen bei einer konstanten Temperatur von 70 °C. Entsprechend der initialen chemischen Zusammensetzung des Zements sowie der Sole in der unteren Kammer wurden die primären sowie sekundären (potenziellen) Mineralphasen zur Festlegung des geochemischen Systems definiert (Tabelle 14). Für die Modellierung von Auflösungs- und Ausfällungsreaktionen der Mineralphasen im Zementkörper wurde ein kinetischer Ansatz gewählt.

Tabelle 14: Primäre und sekundäre Mineralphasen für die THC-Modellierung. Die primären Phasen entsprechen der initialen Zusammensetzung des Zements zu Beginn des Experiments, die sekundären Phasen können bei der Simulation potenziell durch Ausfällung gebildet werden.

Primäre Mineralpha	isen	Sekundäre Mineralphasen			
C-S-H gel (<i>Ca/Si = 1,667</i>)	Portlandite	Calcite	Brucite		
Ettringite	Hydrotalcite	Monocarboaluminate	Monosulfoaluminate		
Siliceous hydrogarnet	Quartz	C-A-S-H (<i>Ca/Si = 1; Al/Si = 0,05; 0,1; 0,15</i>)	M-S-H (<i>Mg/Si = 0,7; 1,5</i>)		

Die Kopplung des thermisch-hydraulischen Modells mit dem chemischen Modell wurde erfolgreich mithilfe von PhreeqC sowie Retraso-CodeBright realisiert. Dieses Softwarepaket koppelt das Modul CodeBright (*Coupled Deformation of BRIne Gas and Heat Transport*) zur Berechnung der Fließeigenschaften mit dem Modul Retraso (*REactive Transport of SOlutes*) für reaktive Transportsimulationen (Saaltink et al. 2004; Olivella et al. 1996).

Für die THC-Simulation des Langzeitexperiments wurde in einem ersten Schritt ein zweidimensionales, achsensymmetrisches Modell aus viereckigen Elementen zur Nachbildung des gesamten Bohrlochsimulators konzipiert (insgesamt 1000 Knoten). Entsprechend der Ergebnisse der TH-Simulationen (Modell 3) wurde der Zementkern in einen inneren Bereich mit sehr geringer Durchlässigkeit und einen hochpermeablen Bereich an der Grenzfläche zum Stahlrohr aufgeteilt. Im nächsten Schritt erfolgte die Definition der für die Modellierung notwendigen Randbedingungen.

Aufgrund der Dimensionierung des Modellaufbaus mit vergleichsweise kleinen Zellen im Grenzbereich Zement-Stahlrohr gegenüber der Länge des Stahlrohrs kam es jedoch zu Stabilitätsproblemen bei den Simulationsdurchläufen, die aus diesem Grund lediglich mit stark vereinfachten chemischen Randbedingungen gerechnet werden konnten.

Bedingt durch die lange Berechnungsdauer sowie häufige Abbrüche der Modelldurchläufe bei Ansatz der komplexen chemischen Randbedingungen wurde für die THC-Simulation schließlich auf ein 1D-Modell aus insgesamt 797 Knoten und 796 Elementen zurückgegriffen, in dem nur die untere Kammer sowie das zementierte Stahlrohr berücksichtigt wurden. Im Zement selbst wurden nur diffusive Transportprozesse angenommen, wobei der Porendiffusionskoeffizient durch Kalibrierung des Modells bestimmt wurde ($6.4 \times 10^{-10} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$).

Mithilfe des eindimensionalen reaktiven Transportmodells mit Retraso-CodeBright und PhreeqC konnten die experimentellen Daten des Langzeitexperiments erfolgreich nachgebildet werden. Für die zeitliche Entwicklung der Fluidzusammensetzung in der unteren Kammer sind die Ergebnisse der THC-Modellierung in Abbildung 64 dargestellt. Diese wurden mit den chemischen Analysen der entnommenen Fluidproben vergleichen. Die Konzentrationen der wichtigsten Kationen und Anionen wurden während des Experiments täglich mithilfe von ICP-OES (*inductively coupled plasma optical emission spectrometry*) und IC (*ion chromatography*) bestimmt.

Der Start der CO₂-Injektion ist sowohl anhand der ansteigenden Konzentrationen von Calcium (*Ca*), Silicium (*Si*) und Magnesium (*Mg*) als auch anhand des signifikant abnehmenden pH-Wertes zu erkennen. Die Anstiege der Ca- und Si-Konzentration können in Zusammenhang mit der Auflösung von Portlandit und Calciumsilikathydrat-Gel (C-S-H) im Zementkern gebracht werden. Der leichte Anstieg der Mg-Konzentration lässt sich durch die Auflösung von Hydrotalcit begründen. Auch bei der chemischen Zusammensetzung des Porenfluids innerhalb des Zementkerns waren deutliche Änderungen durch den Kontakt mit dem CO₂-reichen Fluid festzustellen. Im letzten Zeitschritt der Simulation war vor allem innerhalb des ersten Millimeters im Zement eine Änderung in der Zusammensetzung im Vergleich zum ersten Zeitschritt zu erkennen, beispielsweise für Calcium oder Kalium. Andere Ionen wie Chlorid, Natrium oder Sulfat wiesen sowohl initial als auch im letzten Zeitschritt der Simulation zum Rand des Zementkerns hin höhere Werte auf, was durch Diffusionsprozesse begründet werden kann.



Abbildung 64: Vergleich der zeitlichen Entwicklung der gemessenen Konzentrationen von Calcium, Silicium, Magnesium und pH-Wert (Punkte) mit den Ergebnissen der numerischen Modellierung (schwarze Linien). Die gestrichelten Linien markieren den Zeitpunkt der CO2-Injektion.

Insgesamt zeigte die THC-Modellierung eine signifikante Veränderung der Porosität im Randbereich des Zementkerns mit einer Breite von etwa 3 mm an (Abbildung 65a). Die beobachtete Alterationszone an der Unterseite des entnommenen Zementkerns, entstanden durch Interaktion mit dem CO₂-reichen

Fluid, konnte somit durch das eindimensionale THC-Modell exakt reproduziert werden. Innerhalb einer Eindringtiefe von 0,5 mm wurde eine deutliche Erhöhung der Porosität (Faktor 1,9) beobachtet, die mit der Auflösung der primären Phasen C-S-H Gel, Portlandit, Ettringit und Hydrotalcit zusammenhängt. Im Bereich zwischen 0,5 und 1,3 mm resultierte eine deutliche Porositätsabnahme durch massive Ausfällung von Calcit. Im Bereich bis 3 mm Tiefe wurde erneut eine Porositätszunahme beobachtet, was durch die Auflösung von Portlandit begründet werden kann (Abbildung 65b).



Abbildung 65: (a) Simulierte Porosität des ausgehärteten Zementkerns. Der Initialwert zu Beginn der Simulation betrug 0,23. Die unterschiedlichen Porositätsbereiche sind durch gestrichelte Linien gekennzeichnet. (b) Variation der Volumenanteile verschiedener Mineralphasen im Zementkern im letzten Zeitschritt der Simulation. Bei negativen Werten kommt es zu einer Auflösung der entsprechenden Phase, während positive Werte eine Ausfällung des Minerals anzeigen.

2.3.3 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen aus Technikumsversuchen und Modellierungen zur Bohrlochdichtigkeit (KIT-TP und KIT-IG)

Insgesamt wurden > 100 Dichtigkeitsexperimente am Simulator Typ I an zementierten Casing Rohren von 2 m Länge durchgeführt und die Dichtigkeit nach Druck und Temperaturschwankungen interpretiert. Am Simulator Typ II konnten Experimente unter realen Druckverhältnissen durchgeführt werden

Generell wurden die zementierten Casing-Sektionen nach Druckschwankungen undichter, während die Temperaturschwankungen zu geringeren Undichtigkeiten bis hin zu einer Erhöhung der Dichtigkeit führten.

Ausgehend von der Annahme, dass der Druckausgleich hauptsächlich über den Ringspalt zwischen Zement und Casing abläuft, kann auf Basis der Messwerte die Öffnungsweite des Ringspalts modelliert werden (Klose et al. 2020).

Generell ergab sich bereits nach den ersten Druckschwankungen eine massive Abnahme der Dichtigkeit und eine Vergrößerung des Ringspalts. Nach Temperaturschwankungen kam es teilweise ebenfalls zu einer Vergrößerung des Ringspalts, allerdings weniger extrem als in den vorhergehenden Fällen. Anschließend stellte sich trotz Druckschwankungen eine Sättigung ein. Während die Rolle der Temperaturschwankungen nicht besonders deutlich ist, scheinen größere Druckschwankungen die Dichtigkeit nachhaltig zu verringern, bis nach einigen Belastungszyklen ein Sättigungseffekt eintritt.

Als praktische Empfehlung konnte gezeigt werden, dass das Aufrauen der Casing-Innenseite vermutlich zur besseren Anhaftung des Zements und damit zu einer Erhöhung der Dichtigkeit führte. Dies konnte aus der Untersuchung der Zunderschichten an den Verrohrungsteilen abgeleitet werden. Diese Zunderschichten sind nicht fest mit dem darunterliegenden intakten Stahl verbunden und können daher wesentlich zur Ringspaltbildung beitragen. Diese Zunderschichten werden durch Aufrauen (Sandstrahlen) vermieden.

Die Simulationen der Drucktests, die vom KIT-IG durchgeführt wurden, kamen zu den folgenden Hauptergebnissen.

- Für die quantitative Auswertung von Permeabilitätstests für den SCP (B/B-Tests) wird meist ein Ansatz auf Basis einer effektiven Permeabilität verwendet, der vergleichbar mit dem Modell "Darcy 1" ist (z.B. Xu und Wojtanowicz 2001; Huerta et al. 2009; Kazemi und Wojtanowicz 2014). Dies führte im Fall der TH-Simulationen zu einer schlechteren Nachbildung der experimentellen Daten im Vergleich mit den Modellen 2 und 3, da das System zu stark vereinfacht wird.
- Die Simulationen der Drucktests am Bohrlochsimulator belegen, dass es zur Ausbildung eines präferentiellen Fließpfades am Kontakt Zement/Stahlrohr kommt, höchstwahrscheinlich hervorgerufen durch Schrumpfungsprozesse des Zementkörpers bei Aushärtung. Das Konzept eines nahezu undurchlässigen Zementkerns mit präferentiellem Fließpfades zwischen Zement und Casing (Modell 2 bzw. 3) kann die hydraulischen Charakteristiken hinreichend genau beschreiben und wird durch die Beobachtung einer randlichen Alterationszone bestätigt. Es wurden realistische Werte für die Breite des Ringspalts bzw. des hochpermeablen Bereichs von wenigen Mikrometern erhalten (vgl. Jutten und Hayman 1993; Huerta et al. 2009).

Verwertung der Ergebnisse

Die Entwicklungen im SUBI Projekt führten dazu, dass z.B. ein Autoklavensystem im Technikumsmaßstab (Typ II) entwickelt wurde, mit dem realistische Spannungs- und Porendruckverhältnisse im Untergrund abgebildet und für Großproben genutzt werden können. Axial kann ein Druck bis zu 120 bar aufgebaut werden. Als horizontale (confining) Drücke können bis zu 80 bar wirken und Porendrücke bis zu 70 bar können genutzt werden. Damit steht eine Experimentiermöglichkeit zur Verfügung, die für UGS-Systeme quasi im Realmaßstab und unter in-situ Bedingungen genutzt kann.

Die Empfehlungen zum Sandstrahlen von Rohrtouren können bei zukünftigem Einbau von Verrohrungen berücksichtigt werden und damit zur Dichtigkeit und Sicherheit der Speicher beitragen.

Die Ergebnisse liefern zudem Aussagen für die Speicherdichtigkeit für die CO₂-Speicherung:

- Der Kontakt mit CO₂-reichen reaktiven Fluiden entlang präferentieller Fließpfade führt zu einer millimeterdicken randlichen Alterationszone im ausgehärteten Zementkern, welche durch die eindimensionale THC-Simulation mit Retraso-CodeBright und PhreeqC reproduziert werden konnte. Daneben wurden signifikante Veränderungen der Fluidzusammensetzung beobachtet, sowohl in der unteren Kammer des Bohrlochsimulators als auch innerhalb der Poren des Zementkörpers.
- Durch Interaktion mit dem CO₂-reichen Fluid ist sowohl mit einer lokalen Zunahme der Porosität im Grenzflächenbereich (Auflösung von Mineralphasen) als auch mit einer lokalen Porositätsabnahme aufgrund von Calcitausfällung zu rechnen (vgl. Koukouzas et al. 2017; Xiao et al. 2017). Im Hinblick auf die geologische CO₂-Speicherung und auch für die Erdgasspeicherung sind diese Ergebnisse von großer Bedeutung, da in Bereichen mit erhöhter Porosität die Entstehung präferentieller Fließpfade vereinfacht wird. Des Weiteren kann das validierte THC-Modell auch für die UGS-Systeme angewandt werden, um eine mögliche Zementalteration und eine daraus resultierende Systemundichtigkeit zu untersuchen.

3 Geomechanische Untersuchungen zur Dichtigkeit von Salzkavernen

Beiträge zu den Arbeitspaketen Exp 2, VGS 2, VGS 3 durch (IfG, Piewak & Partner)

3.1 Hintergrund, Aufgabenstellung und Arbeitsschwerpunkte

Über 60 % der deutschen Erdgasvorräte befinden sich in Salzkavernen. Diese haben gegenüber Porenspeichern den Vorteil, dass sie deutlich schneller bei der Ausspeicherung sind und damit flexibler auf den Bedarf reagieren können. Bisher haben sich die Kavernenspeicher im Salz bis auf eine Ausnahme durch große Integrität ausgezeichnet. Ziel der Untersuchungen war a) über geologische Analoga Aussagen zur Langzeitintegrität des Salzgesteins zu gewinnen, und b) die Bedingungen der Kurzzeitbelastungen experimentell und numerisch zu simulieren, um auch den Herausforderungen einer höheren Ein- und Ausspeicherfrequenz (zur Kompensation der volatilen Erneuerbaren Energien) entsprechend begegnen zu können. Salzkavernen stellen als großräumige und schnell nutzbare Speicher für Flüssigkeiten (z.B. Öl, Flüssiggas) oder Gase (z.B. Erdgas, komprimierte Luft, Wasserstoff) einen wesentlichen Bestandteil unserer Energieversorgung dar. Die Teufenlage der weltweit soltechnisch erstellten Kavernen-Speicher variiert entsprechend der lokalen geologischen Bedingungen zwischen 200 und 3000 m mit Speichervolumina zwischen 35.000 m³ und >1.000.000 m³. In Deutschland werden seit den 60er Jahre Kavernengasspeicher betrieben, wobei aktuell 31 Speicher (mit ca. 260 Kavernen) mit einem Arbeitsgasvolumen von 14,3 Mrd. m³ (Vn) in Betrieb sind - gegenüber 20 Porenspeichern mit 9,8 Mrd. m³ (Vn) (LBEG, 2016).

Typische Salzkavernendimensionen sind:

_	Teufenlage	ca. 600 - 1.400 m
—	Kavernenhöhe	ca. 100 - 500 m
—	Kavernendurchmesser	ca. 30 - 80 m
—	Kavernenvolumen	ca. 200.000 - 800.000 m ³

Aufgrund der vorliegenden, langjährigen Erfahrungen der Fluidspeicherung in Salzkavernen besteht in der Fachwelt weitgehend Konsens darüber, dass die KW-Speicherung in Salzkavernen ein erprobtes und technisch sicheres Verfahren darstellt. Da es in der Vergangenheit beim KW-Speicherbetrieb vereinzelt zu technisch bedingten Havarien mit Austritt von eingelagerten Fluiden gekommen ist (z.B. in den USA, Deutschland), besteht insbesondere in der Öffentlichkeit eine erhebliche Verunsicherung.

Für den Bericht wurden die wesentlichen Zusammenhänge und Kernaussagen der bestehenden und in Deutschland behördlich akzeptierten Nachweiskonzepte zur geotechnischen Integrität von Salzkavernen vom IfG zusammengefasst, (s. Teil I des Berichts: wissenschaftlicher und technischer Stand).

Im Rahmen des Projekts SUBI gab es folgende Aufgaben

Recherchen und Erarbeitung von Kriterien

- Darstellung der geowissenschaftlichen und geotechnischen Grundlagen f
 ür den sicheren Speicherbetrieb in Salzformationen (IfG)
- Erarbeitung geomechanischer Kriterien für den Integritätsnachweis für Salzspeicherung (IfG)
- Untersuchung des Langzeitverhaltens von Salz anhand geologischer Analoga (Piewak & Partner)
- Überblick zu aufgetreten Havarien beim Gasspeicherbetrieb (IfG)

Davon ausgehend ergaben sich mit Blick auf die modelltechnische Analyse der Integrität einer bei unterschiedlichen Speicherregimen (saisonal oder kurzzyklisch) zwei Arbeitsschwerpunkte:

Labortechnische und numerische Untersuchungen zur Integrität von Salzkavernen:

- Experimentelle Laboruntersuchungen zur Bestimmung von Materialparametern einer generisch ausgewählten Salzformation sowie der Eigenschaften des Bohrlochzements und des Kontaktbereiches Salz/Bohrlochzement
- Numerische Modellrechnungen einer generischen Typkaverne in zwei unterschiedlichen Teufenlagen: Zielstellung ist die exemplarische Untersuchung von geomechanischen Prozessen aufgrund der Wechselwirkung des Wirtsgesteins Salz mit der notwendigen Zugangsbohrung unter den speicherbetriebsabhängigen thermo-mechanischen Belastungen. Dabei steht insbesondere die Beanspruchung des Bohrlochausbaus im Vordergrund.

3.2 Grundlagen der Gasspeicherung in Salzformationen (IfG)

Bei Salzkavernen handelt es sich de facto um offene Hohlräume in einer praktisch undurchlässigen Gesteinsmatrix des umgebenden Wirtsgesteins Salz mit nur einer – großen – Zugangsbohrung, womit Kavernen bzgl. Aus- und Einspeiseraten sehr flexibel betrieben werden können.



Abbildung 66: Dichter Einschluss von vulkanischem CO_2 in natürlichen Salzhohlräumen über ca. 20 Mio. Jahre. Blick in den Öffnungsbereich des natürlichen Kavernenhohlraums nach dem CO_2 -Ausbruch vom 01.10.13 (Volumen: ca. 100.000 m³ CO_2 im superkritischen Zustand).

Positive Eigenschaften des Salzgesteins sind:

- (1) Dichtheit gegen Gase bei hohen Drücken solange das Salzgestein unter Druckspannung steht: Unter ungestörten Bedingungen im Gebirge sind Salzgesteine flüssigkeits- und gasdicht. Auf der Basis praktischer Erfahrungen wird eine Permeabilität ≤ 10⁻²² m² als dicht definiert. Zusammenfassende Darstellungen finden sich u.a. bei Popp et al. (2014) oder Rübel & Mönig (2008), die u.a. auch Aspekte der Gasbildung in Endlagern für radioaktive Abfallstoffe diskutieren. Natürliche Analoga für die langzeitige Dichtheit von Salzformationen sind u.a. fossile Lösungen oder Restlösungen aus Salzumbildungsprozessen sowie Fluide, die von umgebenden Gesteinen durch tektonische Prozesse, Vulkanismus oder Halokinese in das Salzgestein migriert und dort langzeitig gespeichert wurden (z.B. die CO₂-Vorkommen im Werra-Gebiet, Minkley et al., 2015a, siehe Abbildung 66 und Abschnitt zu geologischen Analoga).
- (2) Hohe mechanische Festigkeit bei viskoser Verformung des Salzes, als Voraussetzung für die Erstellung und den langfristigen Betrieb großer Hohlräume ohne die Notwendigkeit eines stützenden Ausbaus.

Allerdings verringert sich infolge des Kriechens des umgebenden Salzgesteins das Hohlraumvolumen der Kaverne, was als Konvergenz bezeichnet wird. Je nach Betriebsweise der Kaverne, Teufenlage und Salzstruktur kann der durch Konvergenz entstehende Volumenverlust mehrere Prozent pro Jahr betragen. Als Folge kommt es auch in den die Salzformationen überlagernden Deckgebirgsschichten zu Verformungen, die sich an der Erdoberfläche als Bodenabsenkung (Senkungsmulde) bemerkbar machen (Abbildung 67). Damit kommt es u.a. auch zu Beanspruchungen der Bohrlochzementierung bzw. des Kontakts zwischen Rohrtour / Bohrlochzement / Salzgebirge. Diese langzeitigen Prozesse können durch schnelle zyklische Druckänderungen in der Kaverne beim Be- und Entlasten während des Speicherbetriebes überlagert werden.



Abbildung 67: Konvergenz-bedingte Einwirkungen auf die Tagesoberfläche bzw. den Bohrlochstrang infolge des langjährigen Betriebes einer Speicherkaverne (Horvath & Zander-Schiebenhöfer, 2020).

3.3 Geomechanische Kriterien zum Integritätsnachweis

Die Randbedingungen, die zu einem geologischen Integritätsverlust, d.h. Verlust der Dichtheit der Salzgesteine, führen können, sind bekannt und können für den Sicherheitsnachweis einer Kaverne anhand allgemein gültiger Kriterien mittels numerischer Modellrechnungen überprüft werden (Minkley et al., 2015). Konnektivität, d. h. Schaffung miteinander verbundener Rissöffnungen in den interkristallinen Strukturen, kann durch mechanische und hydraulische Beanspruchungen bewirkt werden:

- ➢ Dehnungsbeanspruchung mit Öffnung von Rissen bei Überwindung der Zugfestigkeit bzw. der adhäsiven Kornbindungen → Zugspannungskriterium
- ➢ Scherbeanspruchung mit induziertem Risswachstum und Vernetzung von Korngrenzen → Scherspannungskriterium bzw. Dilatanzkriterium
- → fluiddruck-induzierte Öffnung von Korngrenzen und Vernetzung interkristalliner Fließwege → **Minimalspannungs- bzw. Fluiddruckkriterium** (druckgetriebene Perkolation: $p_i \ge \sigma_{min}$)

Die Bewertung von Grenzsituationen bezüglich der **geologischen** und **technischen** Dichtheit erfolgt mit Hilfe von empirischen Schwellenwerten, die auf der Basis langjähriger Erfahrungen bei der Beurteilung hydrogeologischer Gefährdungen bzw. der Funktionssicherheit hydrologischer Schutzschichten beim Salzbergbau Mitteldeutschlands sowie bei der Kavernendimensionierung für Untergrundspeicher entwickelt wurden (Menzel & Schreiner, 1993; Brückner et al., 2010).

3.4 Langfristiges Verhalten von Salz – Untersuchung Geologischer Analoga (Piewak & Partner)

3.4.1 Abschätzung kritischer geologischer Dehnungsraten im Salz

Mit der Untersuchung von geologischen Analoga sollte u.a. geklärt werden, welche Belastungs- und Verformungsbedingungen zu bruchhaften und damit kritischen Schädigungen führen können, z.B. hohe Verformungsraten infolge großer Spannungsdeviatoren bei geringer Einspannung, wobei insbesondere die kleinste Hauptspannung, σ_{min} , relevant ist. Die starken Senkungen über Kavernen und numerischen Modellierungen (sieh Kapitel 3.3) belegen, dass es zu Verformungen in der Kaverne kommt. Im Allgemeinen wird angenommen, dass dies durch das plastische Verhalten von Salz geschieht. Unter hohen Differenzspannungen und entsprechend geringer Einspannung kommt es zusätzlich zu einer Mikrorissbildung bis hin zur Bruchbildung. Unter hohen Strainraten kann in geologischen Zeiträumen deshalb das Salz auch an die Grenzen der Plastizität gelangen.

Betrachtet man Salz über geologische Zeiträume, dann wird meist von einem plastischen Verhalten ausgegangen. Dadurch kann die Genese von Salzkissen und Diapire erklärt werden. Das Salz kann dabei stark gefaltet werden. Anhydrit Einschaltungen können so zerrissen und Klüfte mit Laugen gefüllt werden.

In den Kalilagerstätten im Werrarevier (Hattingen, Merkers) sind Basaltgänge in das Salz eingedrungen und durchschlagen das Salz. Diese wurden als Analoga genutzt, um das spröde Verhalten von Salz besser zu verstehen. Während eines Untertagebesuches konnten die Kontakte zwischen Basalt und Salz analysiert werden. Die Strukturen sind als Extensionsstrukturen zu erklären. Aus der Geometrie dieser Strukturen und der Dauer der Dehnungsvorgänge konnten die kritischen Strainraten im Steinsalz abgeleitet werden. Die Basalte haben im Werrarevier zur Veränderung der Kalilagerstätten geführt. In Merkers wurden z.B. in großen Hohlräumen Salzkristalle abgeschieden. Diese wurden seit dem Miozän nicht mehr plastisch deformiert (Abbildung 68).



Abbildung 68: Steinsalzkristalle in der Kristallgrotte im Bergwerk Merkers (Exkursion am 14.11.2017). Die Salzkristalle wurden seit dem Miozän nicht mehr deformiert (Foto F. Schilling).

Auch für das Kalirevier Buggingen (Oberrheingraben) war ein entsprechendes Vorgehen vorgesehen. Die Kaligruben in Buggingen sind allerdings verwahrt und können nicht mehr befahren werden. Aus diesem Grunde wurden die entsprechenden Untersuchungen an Risswerken, Aufzeichnungen des Bergbaus sowie aus Literaturdaten durchgeführt. Die Unterlagen wurden beim geologischen Landesamt Baden-Württemberg eingesehen.

3.4.1.1 Basaltgänge von Buggingen

Die Grubenrisse wurden mit den in der Literatur beschriebenen Gangstrukturen von Buggingen verglichen und aus den Grubenrissen und Literaturdaten eine neue Übersichtskarte erstellt (Abbildung 69), in der die Basaltgänge im Originalmaßstab der Grubenrisse dargestellt wurden. Nach Hasemann (1952) sind Gänge an drei Stellen im Nordteil der Grube angetroffen worden. Die Verbindungslinie weist eine Richtung von N175° auf. Das Einfallen der Gänge ist überwiegend steil bis senkrecht. Neben den Basaltgängen wurden im Grubengebäude andere Erscheinungen angetroffen, die im Zusammenhang mit der Basaltintrusion auftraten, nämlich Gasbläser, die zu sogenannten Racheln sowie Störungen geringen Ausmaßes führen. Die Störungen wurden meist westlich der Basaltzonen angetroffen. Vergleichbare Erscheinungen wurden auch im Werra-Gebiet beobachtet.



Abbildung 69: Strukturen im Salz im Kalirevier Buggingen, die auf das Aufdringen der Basalte in einem anisotropen Spannungsfeld hindeuten. In Rot sind Racheln eingezeichnet, in Schwarz die Basaltgänge und in Braun die Begleitstörungen

Aus der Richtungsstabilität der Strukturen ergibt sich, dass zum Zeitpunkt des Aufdringens der Basalte eine maximale Horizontalspannung von etwa N175°E im Untersuchungszeitraum herrschte und auch in den "plastischen" Salzschichten anisotrope Spannungen geherrscht haben müssen. Insgesamt sind die Basaltgänge und die Begleitstrukturen im Salz relativ richtungsstabil.

3.4.1.2 Strainraten zum Zeitpunkt des Eindringens der Basalte in das Kalilager Buggingen und im ORG

Für die Basaltgänge, die das Kalilager in Buggingen durchschlagen, sind keine absoluten Altersbestimmungen bekannt. Es ist aber naheliegend, dass die Basaltgänge von Buggingen ein mit dem Kaiserstuhlvulkanismus vergleichbares Alter besitzen. Im Kaiserstuhlgebiet war der Miozäne Vulkanismus stark ausgeprägt. Sein miozänes Alter wird durch radiometrische Altersbestimmungen, Spaltspuren Alter und durch stratigraphische Befunde ins Miozän gestellt (Lippolt et al. 1963, Baranyi et al. 1976, Wagner 1976, Tobien 1958) und auf einen Zeitraum von ca. 15 bis 18 Mio. Jahren (oberes Untermiozän bis unteres Mittelmiozän, Burdigalium-Langhium nach DST 2002) recht sicher eingegrenzt (Schleicher & Keller 1991). Ausgehend von Altersbestimmungsdaten ist die Zeitdauer der 2 Mio. Jahre dauernden Karbonatit-Intrusionen gut bestimmt (Keller & Henjes-Kunst, o. D.). Die wesentlichen magmatischen Ereignisse dürften sich zwischen etwa 16 Mio. Jahren und 18 Mio. Jahren im Jungtertiär I abgespielt haben.

Neben dem Alter der Basaltgänge sind auch die geometrischen Verhältnisse der Basaltgänge von Bedeutung. Hasemann (1952) gibt die Breite von 4 Basaltgängen mit 1,8 m, 0,4 m 2,9 m und 1,1 m an. Insgesamt besitzen die Basaltgänge eine kumulative Breite von 6,2 m. Im Nordfeld besitzt das Kalilager eine Breite von etwa 1000 m und im Südbereich eine Breite von etwa 800 m. Die Mächtigkeit der Basaltgänge im Nordfeld beträgt zusammen 6,20 m und die Breite des Salzlagers 1000 m.

Rechnet man mit einem Zeitraum von 1 Mio. Jahre für die magmatischen Ereignisse im Bereich des Kaiserstuhls und von Buggingen, dann ergibt sich für diese Krustendehnung eine Strainrate von ca. 2×10^{-16} /s. Für einen Zeitraum von 2 Mio. Jahre errechnet sich eine horizontale Strainrate von ca. 1×10^{-16} /s.

Wie die Dehnungsraten im Salz mit den Dehnungsraten der Kruste korrelieren, ist nur bedingt abzuschätzen, da dies u.A. vom Kopplungsgrad abhängt. Spannungsdeviatoren im Salz können durch Kriechprozesse abgebaut werden. Die Basaltaufstiege sind dagegen ein kurzzeitiges Phänomen, das sich über Tage bzw. Stunden ereignen kann. Unabhängig vom Salzkriechen können die horizontalen Krustendehnungen auch zu einer Absenkung der Horizontalspannung im Salz führen, was ein gerichtetes Eindringen von Magma begünstigt.

Die Strainraten für den Oberrheingraben lassen sich dagegen besser abschätzen. Geht man von einer Sedimentmächtigkeit von bis zu 3500 m aus, die seit Beginn der Hauptsedimentation der Lymnäenmergel im Mittleren Lutet vor etwa 45 Mio. Jahren begann, dann ergibt sich eine mittlere Absenkungsgeschwindigkeit von 0,078 mm/a. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass zwischenzeitlich auch Hebungen stattgefunden haben können. Zum Teil ergeben sich deutlich höhere Absenkungsraten für kürzere Intervalle der Erdgeschichte Ein Beispiel mit hohen Sedimentationsraten stellen die Ablagerung der Oberen Hydrobienschichten dar. Diese wurden in einem Zeitraum von etwa 1 Mio. Jahren zwischen 19 und 18 Mio. Jahren abgelagert. In der Bohrung Offenbach 101 reichen die Oberen Hydrobienschichten von 171,5 m bis 714,0 m Tiefe. Hieraus ergibt sich eine mittlere Sedimentationsrate von etwa 0,54 mm/a. Geht man von 20 km Krustenmächtigkeit zur Berechnung der Strainraten aus, so ergeben sich für den Zeitraum von etwa 18 bis 19 Mio. Jahren (Hydrobienschichten) eine (Vertikale) Strainrate von bis zu 8,3 x 10⁻¹⁶/s. Insgesamt ergibt sich in den letzten 30 Mio. Jahren eine Absenkung im Oberrheingraben, die aber nicht immer gleichmäßig ablief.

Die hohen Sedimentationsraten während der Ablagerung der Hydrobienschichten deuten auf einen Zeitraum mit sehr hohen Strainraten hin. Dieser Zeitraum stimmt relativ gut mit dem Zeitraum des Kaiserstuhlvulkanismus überein (ca. 16-18 Mio. Jahre).

Die erhöhten Krustenstrainraten haben das Eindringen von Basalt in Salz begünstigt, d.h. dass das Salz mit Rissbildung aufgrund der vorherrschenden Extensionsbedingungen mit mutmaßlichen großen Spannungsdeviatoren unter geringer Einspannung (σ_{min}) reagierte.

3.4.1.3 Richtung und Alter der Basaltgänge im Werra-Kali-Revier

Die Basaltgänge im Zechsteinsalz der Grube Merkers stehen mit dem Rhönvulkanismus in Verbindung. Dieser hat ein Alter von etwa 20 bis 18 Mio. Jahren. Ein Vergleich mit dem Vulkanismus des Kaiserstuhls ergibt, dass der Kaiserstuhlvulkanismus etwas jünger ist. Hier haben sich die wesentlichen magmatischen Ereignisse in einem Zeitraum von 2 Mio. Jahren zwischen etwa 16 Mio. Jahren und 18 Mio. Jahren im Jungtertiär I abgespielt haben.

Im Bereich des Werra-Kali-Reviers sind sehr viele Basaltgänge dokumentiert (Lützner et al. 1981, Brosig et al. 2014). Über Tage sind die Basaltgänge relativ schlecht aufgeschlossen. Eine Ausnahme bildet der Basaltgang am Bahnhof von Hörschel. Hier wurde in der Stützwand am Hangfuß des Hörschelberges ein "geologisches Fenster" (Breite etwa 5 m, Höhe etwa 3,5 m) ausgespart. Im Muschelkalk ist hier ein Basanit-Gang zu erkennen (Abbildung 70). Der Gang selbst und die Begleitstrukturen können auf Extensionbewegungen zurückgeführt werden.



Abbildung 70: Basaltgang am Bahnhof Hörschel bei Eisenach. Der Basaltgang ist etwa 0,60 m breit und fällt steil nach Osten ein. Der Gang streicht etwa N15°E. Die Verfärbungen links und rechts des Ganges können auf Gase in Klüften zurückgeführt werden.

Der Gang streicht etwa N15°E und fällt mit etwa 75° - 80° nach Osten ein. Er hat eine Breite von etwa 60 cm (min. ca. 51 cm und max. ca. 63 cm). Nach Abratis et al. 2007 ist der Basaltgang der älteste im Untersuchungsbereich und besitzt ein Alter von 29 Mio. Jahren.

Die mittlere Breite der Gänge im Werra-Kali-Revier liegt bei 0,55 m und die Höhe der Basaltgänge im Zechstein kann mit etwa 400 m angesetzt werden. Die Gänge sind sehr richtungsstabil und streichen etwa Nord-Süd.

Im Bereich Hattorf/Unterbreizbach wurden Basaltgänge mit einer Länge von insgesamt 50 km Länge identifiziert (Lützner et al. 1981, Abbildung 71). Die Richtungsrose der Gänge (ca. 110 Werte für 55 km Gänge) für den Bereich des Werra-Reviers ähnelt der von Buggingen. Dies deutet auf ein großräumig vergleichbares Spannungsfeld im Miozän hin.



Abbildung 71: Geologische Karte im Bereich des Werra-Reviers. In schwarz sind die Basaltvorkommen eingetragen. Die Masse der Gänge wurde in Untertageaufschlüssen kartiert (Brosig et al. 2014). Die größeren runden schwarzen Gebilde sind Basaltvorkommen die über Tage auftreten. Es sind insbesondere die Basaltvorkommen des Dietrichsbergs und des Öchsenbergs bei Vacha. Kartengrundlage ist die Geologische Karte im Maßstab 1:200.000 (Brosig et al. 2014). Rote Striche deuten die Orientierung der rezenten maximalen horizontalen Hauptspannung an.

3.4.1.4 Strainraten zum Zeitpunkt des Eindringens der Basalte in das Kalilager des Werra-Reviers

Hierzu ist der Zeitraum der Intrusion der Basalte und die Breite der Basaltgänge sowie die Breite des Salzlagers zu klären.

Die wesentlichen magmatischen Ereignisse des Rhönvulkanismus dürften sich in einem Zeitraum von 2 Mio. Jahre zwischen etwa 18 Mio. Jahre und 20 Mio. Jahre abgespielt haben (Abratis et al 2007). Im Bereich Hattorf/Unterbreizbach wurden Basaltgänge mit einer Länge von insgesamt 50 km Länge identifiziert. Die mittlere Breite der Gänge liegt bei 0,55 m. Auf einer Breite sind entsprechend Abbildung 71 auf Höhe Oberbreizbach - Sünna ca. 10 Gänge zu erkennen. Die kumulative Breite der Basaltgänge kann auf etwa 5 – 6 m abgeschätzt werden. Die Breite des Werra-Reviers in diesem Bereich beträgt etwa 10 km.

Rechnet man mit einem Zeitraum von 2 Mio. Jahre für die Krustendehnung im Bereich des Kalilagers-Werra, dann ergibt sich für diese Situation eine Strainrate von 1×10^{-17} /s. Somit ergeben sich für das Kalirevier Werra eine deutlich niedrige Strainrate im Miozän als die für die Strainraten in Buggingen (Tabelle 15). Tabelle 15: Vergleich von Verformungsraten

Lokation	Dehnungsrate [mm/a]	Strainrate [/s]	Dauer [a]	Zeitraum [ma]	Orientierung Strain
Buggingen	0,062	2 x 10 ⁻¹⁶ bis 1 x 10 ⁻¹⁶	1-2.000.000	18-16	Horizontal
Buggingen	0,036	5,7 x 10 ⁻¹⁶	2.000.000	18-16	Vertikal
Oberrheingraben	1,1	1,5 x 10 ⁻¹⁶	11.000.000	34-23	Horizontal
Oberrheingraben	1,0		11.000.000	23-12	Horizontal
Oberrheingraben (Hydrobienschichten)	0,54	8,3 x 10 ⁻¹⁶	1.000.000	19-18	Vertikal
Werra Kalirevier		1-2 x 10 ⁻¹⁷	2.000.000	20-18	Horizontal

3.4.2 Rezenter Spannungszustand im Werra Kalirevier

Zum regionalen Spannungsfeld, dem Spannungsfeld im Zechsteinsalz und dem Spannungsfeld im Rotliegend (u.a. Karbonat/Anhydrit bzw. Sandsteine) unter dem Zechsteinsalz des Werra-Kalireviers sind nur wenige Informationen vorhanden. Sie stammen aus Untersuchungen eines Gasausbruchs und Hydraulic-Fracturing Messungen (Tabelle 16).

Für den großen Gas-Ausbruch 2013 (s.u.) im Zusammenhang mit einer Sprengung bei Unterbreizbach vom 01.10.2013 gibt IfG (2017) den Druck in einer Teufe von 900 m mit 22 MPa an (24,44 MPa/km). Für eine Teufe von 800 m berechnet sich der lithostatische Druck (und der Porendruck des eingeschlossenen CO_2) und damit auch S_h zu 19,7 MPa im Zechsteinsalz.

Damit ist die minimale Horizontalspannung im Rotliegend (Bohrungen Sünna, Vacha) unterhalb des Zechsteinsalzes mutmaßlich fast 8 MPa niedriger als im Salz darüber. Entsprechend müssen an der Basis des Zechsteins sehr hohe Spannungsgradienten vorhanden sein.

Tabelle 16 :	Übers	icht Spannui	ngszustand im	Werra Kalirevier.	An d	en meisten	Lokationen sir	nd nur Teilinforma	ntione	n zu
Porendruck	(P _p),	maximaler	horizontaler	Hauptspannung	(S _н),	minimaler	horizontaler	Hauptspannung	(S _{h)}	und
Vertikalspan	nung (S _v) vorhande	n.							

Lokation	Tiefe	Pp	Sн	Sh	Sv	Orientierung
Messung/Beobachtung	[m]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	SH
Bohrung bei Sünna	808			11,85	19,7	NW-SE
Hydraulic Fracturing						
Bohrung Vacha						150
N 50,79° und E 10,00°						
Gasausbruch 1.10.2013	900	19,7				

Die niedrigen Horizontalspannungen im Subsalinar können die Erscheinungen im alten Bergwerk in Springen/Merkers erklären. Hier wurden in den Jahren 1969 und 1976 zwei aktive Salzlösungsvorkommen angetroffen. Auf einer Kluft von etwa 6 cm Breite strömten mehr als 300 l Salzlösung pro Minute zu. Diese NNW-SSE streichende Zufluss Zone streicht parallel zur Richtung zur rezenten maximalen Horizontalspannung und deutet darauf hin, dass unter dem rezenten Spannungsfeld das Subsalinar extensional beansprucht wird.

Aus der Richtung des rezenten Spannungsfeldes und der Richtung der Basaltgänge im Miozän kann abgeleitet werden, dass die Richtung der maximalen Horizontalspannung seit dem Miozän, in den letzten 18 bis 20 Mio. Jahre; um etwa 30° gegen den Uhrzeigersinn rotiert ist.

Darüber hinaus gibt es Hinweise auf dilatante Verformungsprozesse im Salz, aber die genauen Randbedingungen sind unklar. Wie hier nachfolgend ausgeführt, können die Verformungsraten (abhängig von der Dauer der tektonischen Beanspruchung) lokal und sporadisch extrem viel höher sein.

Die Spannweite der abgeleiteten Strainraten reicht von relativ langen Zeiträumen von etwa 1 - 2 Mio. Jahren bei Krustendehnung bis zu Kurzereignissen des Basaltdurchschlags innerhalb weniger Stunden und Tage. Das bedeutet, die Verformungsraten können um mehr als 10 Größenordnungen variieren.

3.4.3 Auswirkungen von Spannungsänderungen auf die Stabilität untertätiger Hohlräume im Salz – theoretische Betrachtung und Fallbeispiele

Im Salz wird allgemein von einem lithostatischen Spannungszustand ausgegangen. Direkt unterhalb des Salzes im Subsalinar sind jedoch stark anisotrope Horizontalspannungen (s.o.) und meist hydrostatische Fluiddrücke nachgewiesen. Wenn im Salz (bzw. bei den Kavernen) spröde Einschlüsse in der Nähe der Basis des Zechsteins vorhanden sind, können hohe Spannungsgradienten an der Basis des Zechsteins für die Standsicherheit der Kavernen problematisch werden.

Ändern sich die Spannungsrandbedingungen, dann ändern sich auch die Druckverhältnisse in Fluideinschlüssen im Salz. Falls der Porendruck eines Fluideinschlusses im Salz größer wird als die minimale Normalspannung, dann kann dies zu einer Durchlässigkeit des Gesteins führen. Das Kriterium, das diese Permeabilitätszunahme beschreibt, wird auch als Minimalspannungs- bzw. Fluiddruckkriterium (hydraulisches Kriterium) bezeichnet. Physikalischer Hintergrund des Minimalspannungskriteriums ist, dass wenn der Fluiddruck die Größe der minimalen Hauptspannung des Gebirges erreicht oder überschreitet es zu einer Öffnung an den Korngrenzen und damit zu einer druckgetriebenen Vernetzung von Fließwegen kommt (IfG, 2017). Die Untersuchungen des IfG zeigen allerdings auch, dass ein hydraulisches Aufreißen (frac) nur unter extremen Randbedingungen (z.B. Gebirgsschlag) mit extrem schneller Entlastung der wirkenden Einspannung auftreten kann (IfG, 2007). Voraussetzung dafür ist, dass der Deviator zwischen Fluiddruck und Minimalspannung noch um den Betrag der hydraulischen Aufreißfestigkeit (ca. 1 -2 MPa) überschritten wird. Das ist in den meisten Fällen ausgeschlossen, da infolge von Permeation die Durchlässigkeit im umgebenden Salzgebirge zunimmt und der Fluiddruck quasi im Sinne eines natürlichen Überdruckventils abgebaut werden kann.

Bei Abtragung des Deckgebirges wird der lithostatische Druck der Gesteinssäule reduziert. Da der Porendruck den lithostatischen Druck nicht überschreiten kann (Zugfestigkeitskriterium), muss der Porendruck des eingeschlossenen Salzes ebenfalls reduziert werden. Dies geht nur, wenn sich Fließwege im Salz öffnen, oder sich die Hohlräume infolge kriechbedingter Konvergenz vergrößern. Insbesondere die oben beschriebenen Perkolationsprozesse könnten die Ursache für die Ausbreitung der Salzlösungslaugen aus dem Rotliegend in Zechstein sein.

An Fallbeispielen wurde gezeigt, welche großen Gasmengen im Salz gespeichert sind. Da in den salinaren Schichten des Zechsteins extrem große CO₂-Volumina gespeichert sein können, stellt sich die Frage, ob es bei langsamer Verringerung der Normalspannung auch zu Gas-Fracs kommen kann.

Beispiel 1- Gasfracs in Völkershausen nach Gebirgsschlag:

Unter Völkershausen im Werra-Kalirevier ereignete sich 1989 ein Gebirgsschlag mit einer Lokalmagnitude von M_L = 5,6 als Folge einer nicht ausreichenden Pfeilerdimensionierung im sprödbruchgefährdeten Salzgestein Carnallitit. Beim Kollaps des Grubenfeldes wurde hier das Minimalspannungskriterium verletzt. Nach Durchlaufen der Druckwelle vor der Bruchfront fiel, verbunden mit dem Konvergenzsprung im Abbauhorizont, die minimale Hauptspannung an der Basis

des Unteren Werra-Steinsalzes schlagartig von etwa 18 MPa auf wenige MPa ab (IfG, 2007). Nach dem Gebirgsschlag traten am südöstlichen Bruchfeld aus Spalten und Risse in der Streckensohle CO₂ aus. Die Fracs entstanden durch eine schnelle Herabsetzung der minimalen Hauptspannung in Folge des Gebirgsschlages. Bis Ende 2000 sind aus diesen Rissen aus dem unterlagernden Rotliegend etwa 46.000.000 m³ CO₂ ins Grubengebäude geströmt. In einer 240 m langen Horizontalbohrung (Hz 156) im Unteren Werra-Steinsalz wurden in dem Bereich der ehemaligen CO₂-Durchtrittszone verheilte und offene Gasfracs erbohrt (Abbildung 72). In diesem Bereich wurde die minimale Hauptspannung mit mindestens 11 MPa bestimmt. Dies ist noch deutlich niedriger als die ursprüngliche Hauptspannung von 18 MPa. Jedoch liegt sie aber wieder deutlich über der Hauptspannung, die direkt nach dem Gebirgsschlag (wenige MPa) bestand. Die minimale Hauptspannung liegt über dem CO₂-Gasdruck von 7,0 bis 7,5 MPa. Weitere Bohrungen zeigen keine Reaktion auf eine Druckentlastung in der Bohrung HZ 156. Dies wird so interpretiert, dass die 10 m mächtige Steinsalzschicht vom tiefsten Punkt der Bohrung bis zur Basis des Salinars wieder eine Dichtfunktion übernommen hat.



Abbildung 72: In einer 240 m langen Horizontalbohrung (Hz 156) im Unteren Werra-Steinsalz wurden in dem Bereich der ehemaligen CO₂-Durchtrittszone verheilte und offene Gasfracs erbohrt (IfG, 2017).

Beispiel 2: Grube Menzengraben

Am 07.07.1953 kam es in der Grube Menzengraben (heute Merkers) durch eine Sprengung zu einem Ausbruch. Dabei trat CO_2 aus dem Schacht aus, wodurch drei Menschen über Tage starben. Der entstandene Ausbruchshohlraum hatte eine Länge von etwa 100 m und reichte bis 20 m ins hangende Steinsalz hoch. Die Angaben für die ausgeworfene Salzmenge variieren zwischen 60.000 und 100.000 t. Bei diesem Ausbruch wurden über 1 Mio. m³ CO₂ freigesetzt (Duchrow 1997). Der Ausbruch fand in einer Teufe von 588 m statt und nach IfG (2017) beträgt der lithostatischen Überlagerungsdruck 144 bar (14,4 MPa). Bei diesem Druck muss sich das im visko-plastischen Salzgestein eingeschlossene CO_2 im flüssigen bzw. überkritischen Zustand befunden haben (Abbildung 73)



Abbildung 73: Phasendiagramm für CO₂ mit Zustandsbedingungen bei den Ausbrüchen in Merkers (gelber Punkt links) und in Unterbreizbach (gelber Punkt rechts, nach IfG (2017))

Beispiel 3: CO₂-Ausbruch im Flöz Thüringen in der Grube Unterbreizbach

Bei IfG (2017) ist der mit Abstand größte CO₂-Ausbruch in der Grube Unterbreizbach beschrieben (s.a. Abbildung 66). Durch eine Sprengung am 01.10.2013 wurde die Schutzschicht zu einem ca. 100.000 m³ großen Kavernenhohlraum im hangenden Steinsalz, in dem das CO₂ unter hohem Druck eingeschlossen war, bis auf wenige Meter geschwächt. Dem hohen Fluiddruck von 220 bar (22,0 MPa), in einer Teufe von 900 m, konnte die verbliebene restliche Barriere nicht standhalten und das CO₂ trat explosionsartig in das Grubengebäude ein. Der Druck des eingeschlossenen CO₂ lag bei 22 MPa was weit über dem kritischen Druck für den superkritischen Zustand von CO₂ liegt. Vermutlich lag auch die Gebirgstemperatur in 900 m Teufe geringfügig über der kritischen Temperatur von 31° C. Ein Überblick über weitere Gasausbrüche des Werra-Reviers ist in Tabelle 17 gegeben.

Bei einer Entspannung des superkritischen CO_2 (ca. 220 bar, 31°C, Abbildung 73, gelber Punkt rechts) auf Atmosphärendruck beträgt der Faktor für die Volumenvergrößerung etwa 500. Der entstandene Hohlraum mit einem Volumen von etwa 100.000 m³ hat eine Länge von etwa 180 m und eine Höhe von maximal 67 m (IfG, 2017).

Die Ansammlung von Gas im Salz kann geomechanisch erklärt werden. Im Bereich Unterbreizbach kam es seit dem Miozän zu einer starken Erosion in den Talbereichen. Hierdurch wird die Vertikalspannung verringert. Im Salz geht man in 1. Näherung davon aus, dass sich ein lithostatischer Spannungszustand einstellt. Dies bedeutet, dass auch die Minimalspannung durch die Heraushebung herabgesetzt wird. Bei einer raschen Entlastung kann sich der Porendruck in einem fluidgefüllten Hohlraum nicht abbauen. In diesem Falle kommt es durch die Verletzung des Minimalspannungskriteriums zu einem Frac im Salz.

Der Ausbruch von 2013 fand in einer Teufe von etwa 900 m statt. Geht man davon aus, dass seit dem Basaltvulkanismus etwa 250 m Deckgebirge abgetragen wurden, dann fand die Intrusion der Basalte und der Kohlensäure in einer Teufe von etwa 1150 m statt. Nach der Intrusion des CO₂ in die Lagerstätte und der Umwandlung der Kalisalze wurde das CO₂ in der Nähe der Basalte in das Salz eingeschlossen. Das CO₂ hat hierbei wie das Salz auch einen annährend lithostatischen Zustand und der Porendruck (in 1150 m) lag damit initial bei etwa 28 MPa, während die Minimalspannung heute bei ca. 22 MPa liegt. Dann hätte das Gas das Gestein gefract und wäre bereits vorher entwichen. Die Schnitte und die Schlechten im Bereich der Basalte werden als Gasfracs gedeutet. Allerdings können diese bereits bei der Intrusion der Basalte entstanden sein. Damit das Gas so lange eingeschlossen sein konnte, musste sich ein allmählicher Druckabbau von 6 MPa seit dem Miozän entwickelt haben. Verringert sich die Minimalspannung auf den fluidgefüllten Hohlraum sehr langsam, dann kann das Salz durch Kriechen auf den Überdruck im Hohlraum reagieren. In diesem Fall kann das Salz vom Hohlraum langsam wegfließen. Da die Druckgradienten nach unten zunehmen ist zu erwarten, dass sich der Hohlraum im Salzgebirge bevorzugt nach oben verlagert. Sind fluidgefüllte Hohlräume relativ nahe am Salzspiegel vorhanden, kann eine Druckentlastung (z.B. durch die Sprengung) dazu führen, dass sich flüssiges CO₂ in gasförmiges CO₂ umwandelt.

Grube	Datum	Auswurf Salz [t]	Auswurf CO ₂ [m ³ _N]	Bemerkungen
Bohrung "Tritthäle"	23.05.1895		große Menge CO ₂	Kalisalzlager in 347 m, 33 bar
Laimbacher Hundskopf	1896-1950		50 Mio. kg CO ₂	1920, 1,5 Mio. kg
Bernhardhall	1900/1901	max. 360	mehrere Gasauswürfe	3 Tote
Bernhardhall	1903-1908	je 10-100	20 Ausbrüche	
Großherzog von Sachsen	27.11.1908	7.200		CO ₂ - über Schacht auf angrenzende Felder
Großherzog von Sachsen	1908-1922	10-100, 4 x > 1.000		52Ausbrüche, 1 Toter ohne Jahreszahl
Hattorf	1911-1912	10 -100	7 Ausbrüche	
Salzungen (Bernharshall)	1919-1925	720	Ausbruch 1925	
Sachsen-Weimar (Unterbreizbach)	04.09.1937	5.000		1 Toter
Sachsen-Weimar (Unterbreizbach)	15.04.1938	7.000		1 Toter
Sachsen-Weimar (Unterbreizbach)	1938-1945	23 x >100, 10 x > 1000		1 Toter am 25.02.1944
Kaiseroda II/III	30.07.1938	3.700	50.000	11 Tote, umfangreiche Materialschäden
Kaiseroda II/III	31.12.1938	15.000	200.000	2340 to Salz pneumatisch über Gesenk gefördert

Tabelle 17: Zusammenstellung der Gasausbrüche in den Kaligruben des Werra-Reviers, ausgeworfene Salz- und Gasmengen (nach Duchrow 1997 und Minkley 2015b).

Grube	Datum	Auswurf Salz [t]	Auswurf CO₂ [m³ _N]	Bemerkungen
Großherzog von Sachsen II/III	10.05.1940	670	15.000	
Großherzog von Sachsen II/III	29.01.1942	5.000	75.000	kräftiger Luftstoß über Tage
Großherzog von Sachsen II/III	03.06.1943	18.000	450.000	Aus 520 m Teufe strömt etwa 8 Minuten CO_2 aus. CO_2 stürzt beim Pumpen mit lautem Getöse in den Schacht
Sachsen-Weimar (Unterbreizbach)	10.05.1950	20.000		Abbaublock wurde stillgelegt
Menzengraben	22.03.1947	8.000	104.000	
Menzengraben	07.07.1953	60.000 - 100.000	1.000.000	3 Todesopfer, 25 Minuten Dauer, 520 m Teufe, Dekameter hohe Auskesselungen im Hangenden Steinsalz
Menzengraben	1955-1957	100-25.000 im Schnitt: 2.200		35 Salzauswürfe
Menzengraben	17.04.1958		<500.000	5 oder 6 Tote, nach 5 Tagen noch 17 atü Gasdruck, freie Kohlensäure/Gasbläser
Unterbreizbach	25.11.1961	50		Kernringschrämmaschine
Unterbreizbach (Marx-Engels)	09.02.1975	8.000		2 Tote, 11,3 to schwerer um 145 m zurückgeworfen, Großlocheinbruchbohren
Hattorf	20.10.1981	20.000	400.000	Salzblöcke von halber to flogen 200 m weit
Ernst-Thälmann (Merkers)	21.08.1981	6.000	1.000.000	Spezifische Gasmenge 167 m3/to, drusenartige Hohlräume und Kristallzonen im Hangenden, Strömungsgeschwindigkeit 220 m/s
Ernst-Thälmann (Merkers)	25.05.1984	110.000	2.300.000	21 m3/to reichlich kluft- und schnittführende Kohlensäure
Unterbreizbach	27 30.08.2003		5.000.000	Hochbohrung, Bildung von CO2-Gletscher
Unterbreizbach	01.10.2013	100.000	40.000.000	3 Tote, CO2 superkritisch

Beispiel 4: CO₂-Zutritt aus der Bohrung Tritthäle

Hier wurde bereits 1895 in einer Tiefe von 347 m eine große Menge an CO₂-freigesetzt. Möglicherweise herrscht hier im Kalilager bereits ein ähnlicher Spannungszustand wie im Buntsandstein. Im Deckgebirge (Buntsandstein) sind die Gradienten der minimalen Horizontalspannung geringer als im Salz. Für einen Spannungsgradienten von 16 MPa/km berechnet sich für eine Teufe von 370 m die minimale Horizontalspannung zu 5,92 MPa und die Temperatur berechnet sich für eine Basistemperatur von 10 °C an der Oberfläche sowie einen geothermischen Gradienten von 30 °C/km zu 21,1 °C. Unter diesen Umständen ist CO₂ gerade noch flüssig und die Dichte liegt bei ca. 777 kg/m³. Knapp darüber, in einer Teufe von 360 m berechnet sich die minimale Horizontalspannung zu 5,76 MPa und die Temperatur zu 20,8 °C. Unter diesen Umständen ist CO₂ bereits gasförmig und die Dichte liegt nur noch bei 163,8 kg/m³. Das Gas expandiert in diesem Bereich extrem. So könnte der erste CO₂-Zutritt aus der Bohrung Tritthäle von 1895 erklärt werden.

3.4.3.1 Übersicht Gasaustritte im Werra Kali-Revier

Duchrow (1997) beschreibt unzählige Kohlensäurebläser und Ausbrüche von Salz und Kohlensäure aller Größenordnungen - im Bereich von 10^1 bis 10^6 m³_N (Normkubikmeter) Gaslieferung bzw. 10^1 bis 10^5 t Salzauswurf im Werra Kali-Revier. Aus den Ausführungen von Duchrow (1997) geht deutlich hervor, dass die stärksten Gasaustritte erst ab 1953 auftraten. Dies könnte mit der zunehmenden Teufe der Abbaue bzw. der gleichzeitigen Abbauintensivierung zu tun haben.

3.4.4 Auswirkungen von Überdrücken auf die Integrität des Deckgebirges - Fallbeispiele

Im nächsten Abschnitt werden die Auswirkungen von Überdrücken auf die Integrität des Deckgebirges am Beispiel der Havarien der Kavernen EPE S5 (Ölkaverne) und Lauchstädt 5 (Gaskaverne) untersucht. Hier können die Fließwege und die Aktivierung von Störungen im Deckgebirge wichtige Erkenntnisse zur Erhaltung der Integrität des Deckgebirges erbringen.

Fallbeispiel EPE S5, Ölfrac im Deckgebirge

Am 12.04.2014 wurde ein Ölaustritt auf einer Weide im Amtsvenn festgestellt. Am 15.04.2014 wurden weitere Ölaustritte in einem Waldstück und Vogelschutzgebiet (Fundstelle 2) sowie auf dem angrenzenden Hof der Familie Sundermann (Fundstelle 3) bemerkt. Am 23. und 24.02.2014 kam es in der Rohölkaverne S5 (Abbildung 74) zu einem Druckabfall um rund 3,6 bar. Daraufhin wurde die Kaverne außer Betrieb genommen und intensiv messtechnisch untersucht. Dabei wurden keine Undichtigkeiten in der Kaverne oder der Verrohrung zur Oberfläche festgestellt.

<u>Druckverhältnisse und Leckagestelle</u>: Den Kopfdruck des Öls am 23.03.02 geben Kukla & Urai (2015) mit etwa 6,35 MPa an (Abbildung 74). Am 23. und 24.02.2014 kam es in der Rohölkaverne S5 zu einem Druckabfall (Δpi) um rund 3,6 bar (0,36 MPa) ((Ministerium für Wirtschaft, Energie Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen (MWIDE NRW)). Nach Kukla & Urai (2015) lag der Öldruck bei 217 m kurz vor dem Ereignis etwa bei 8,1 MPa. Dies entspricht dem Kopfdruck von 6,35 MPa sowie eine Rohölsäule von 217 m mit einer Dichte von 0,8 kg/l. Beim hydraulischen Doppelpackertest am 30.06.2014 lag der Kopfdruck bei 2,6 MPa.

Die Undichtigkeit in der Verrohrung wurde in einer Teufe von 217,3 m nachgewiesen. Bei 217,3 m ist die Verbindung bis 2,5 MPa Kopfdruck hydraulisch dicht. Bei höheren Drücken erfolgte ein Abfluss in das Nebengestein, bei stark abnehmendem Kopfdruck auch ein Rückfluss. Bei dem Doppelpacker-Test reagierte die Bohrung ab einem Injektionsdruck von 2,6 MPa. Für die Tiefe von 217,3 m ergibt sich der hydrostatische Druck der Injektionssäule zu 2,13 MPa. Somit öffnete in 217,3 m Tiefe die Formation bei einem Druck von 4,73 MPa (Downhole). Der Druck, der vor der Undichtigkeit mit 8,1 MPa in 217 m vor der Undichtigkeit betrug, ist deutlich höher als die kleinste totale Hauptspannung im Ton, die der kleinsten horizontalen Hauptspannung entspricht ($S_h = 4,73$ MPa). Dies entspricht einem S_h - Gradienten von 21,76 MPa. Die mittlere Gesteinsdichte in diesem Teufenbereich geben Kukla & Urai (2015) mit 2,347 kg/m³ an. Dies entspricht einer Vertikalspannung S_v von 5,00 MPa in 217,4 m und einem S_v -Gradienten von 23,02 MPa/km. Die Differenz zwischen S_h und S_v ist relativ klein (ca. 0,27 MPa).

Beim Eintritt der Undichtigkeit lag der Druck in etwa 217 m Tiefe bei 8,1 MPa. Die entspricht einem Druckgradienten von 37,26 MPa/km und damit weit über dem S_v -Gradienten. Damit wurde das Öl in die Ton- und Schluffsteine der Unterkreide eingepresst. Die Druckdifferenz zwischen 8,1 MPa vor der Undichtigkeit bei 217 m und 4,73 MPa bei der hydraulischen Reaktion im Bereich der Leckagestelle liegt bei etwa 3,4 MPa¹. Wegen des kapillaren Widerstands und der geschätzten sehr niedrigen Durchlässigkeit für Öl, konnte dieses nicht oder nur gering in die Matrix des Tons migrieren. Stattdessen wurden vermutlich bestehende Klüfte geöffnet, durch die das Öl migrieren konnte.

¹ Dieser Druckabfall ist etwa zehnmal größer als der der vom (MWIDE NRW) angegebene Druckabfall. Eventuell liegt eine Verwechslung der Begriffe bar und MPa vor.



Abbildung 74: Schichtenfolge und Drucksituation in der Kaverne S5 (aus Kukla & Urai 2015).

Die Ölverteilung kann am ehesten durch einen hydraulischen Frac in NE Richtung ausgehend von der Leckage erklärt werden. Da sich der Riss wieder geschlossen hat muss die Rissausbreitung in einem kurzen Zeitraum erfolgt sein (vermutlich 22.02.2014 und 23.02.2014).

Abschätzung der Rissfläche

Die Verbindungslinie mit Ölaustritten zwischen der Kaverne Epe S 5 über die Bohrung KRU1, KB1, KB4, KB 3 und den Schurf 2 ist horizontal etwa 700 m lang. Der Druckabfall in der Ölkaverne dauerte vermutlich maximal zwei Tage (23. und 24.02.2014), möglicherweise erfolgte er auch in einem deutlich kürzeren Zeitraum. In Abbildung 76 ist ein SW-NE-Schnitt durch die Hauptschadenszentren im Bereich der Kaverne Epe S5 dargestellt (Schnittführung Abbildung 75). Zusätzlich zu den ölführenden Bereichen (beobachtet) ist eine Einhüllende der Rissfläche dargestellt, die bei der Leckage entstand.

An der Oberfläche kann die Rissausdehnung aus dem Auftreten der Ölaustritte abgeschätzt werden, in der Tiefe wird die Rissausdehnung über die Spannungen abgeschätzt: Die minimale Horizontalspannung an der Stelle der Leckage liegt bei 4,73 MPa. Nach oben und schräg nach oben (seitlich) konnte sich der Riss in Bereiche mit niedrigeren Normalspannungen ausbreiten. Der resultierende Riss besitzt damit eine Fläche von annähernd 40.000 m².



Abbildung 75: Lage der Bohrungen und Ölaustrittstellen. In die SW-NE geführte Schnittlinie durch die Bohrung Epe S5, KRU 1, KB 3 und die Schürfe 1 und 2 wurden die Bohrungen KB 1 und KB 4 in die Schnittlinie (Abbildung 76) projiziert. Grundlage der Abbildung aus dem Bericht MWIDE NRW.

SW

NE



Abbildung 76: SW-NE-Schnitt durch die Hauptschadenszentren im Bereich der Kaverne Epe S5. Zusätzlich zu den festgestellten ölführenden Bereichen in Pink ist in Grün eine mögliche Einhüllende der Rissfläche dargestellt.

Fallbeispiel Lauchstädt 5, Gasfrac im Deckgebirge

Am 29.03.1988 kam es bei Lauchstädt, südlich von Halle/Saale zu einem Ausbruch von Ethylengas aus der Speicherbohrung Lauchstädt 5. Ebenfalls ist hier als Vorbemerkung festzuhalten, dass auch hier eine technische Havarie im Deckgebirge und kein Versagen des Wirtsgesteins Steinsalz im Umfeld der Kaverne ursächlich war. Abbildung 77 zeigt mit welcher Wucht der Ausbruch des Gases an der Oberfläche stattgefunden hat.



Abbildung 77: Details der Ausbrüche im Bereich der Sonde Lauchstädt 5 (aus Katzung et al. 1996).

Ausbruch und Ursache

Die Bohrung Lauchstädt 5 wurde im Jahr 1971 gebohrt und komplettiert. In einer Teufe von 726,4 m wurde die 11^{3/4}-Zoll Rohrtour zementiert. Zuvor wurde die 16^{3/4}-Zoll Rohrtour bei 92,1 m abgesetzt. Die Kaverne besitzt ein Volumen von 40.000 m³ und wurde zur Etylenspeicherung verwendet. Am 29.03.1988 wurde ein Druckabfall von 7,5 MPa auf 4 MPa bemerkt. Eine Stunde später erfolgte 50 m von der Bohrung entfernt ein Ausbruch eines Ethylen-Wasser-Gemisches. Danach folgten Ausbrüche in nordwestliche Richtung und nahezu zeitgleich auch eine starke Eruption etwa 250 m weiter in südlicher Richtung bei Bohrung Lauchstädt 6. Katzung et al. (1996) berichten, dass entlang einer Linie von etwa 2 km Länge Emissionen austraten. Hohe Ethylenkonzentrationen in Trinkwasserbrunnen in der Nähe der Kaverne 5, in einer Tiefe von 100 bis 140 m, ließen auf eine flachere Quelle schließen. Untersuchungen bestätigten eine Leckage in der 11 ¾-Zoll Rohrtour der Bohrung Lauchstädt 5 in einer Tiefe von 111,8 m. Die Ausbrüche erfolgten entlang (paralleler) linearen Strukturen. Sie nahmen innerhalb weniger Tage an Intensität ab. Als 60 -80 % der Kaverne entleert waren endeten die Eruptionen.

Geometrie der Ausbruchspunkte und Ausbruchsmechanismus

Die meisten der Ausbruchstellen liegen auf einer etwa N125°E gerichteten Zone. Diese Ausbruchstellen lassen sich auf einer Länge von etwa 1,5 km Erstreckung verfolgen. Zwei größere Strukturen streichen etwa N165°E bis N170°E (Abbildung 78).



Abbildung 78: links) Luftbild der Ausbruchstellen bei der Havarie der Sonde Lauchstädt 5. rechts) Ausbruchstellen und Lage der Störungen im Untergrund (aus Katzung et al. 1996).

Die Vertikalspannung beträgt in der Leckageteufe von 111,8 m (100 m Buntsandstein und 11,8 m Quartär) ca. 2,6 - 2,7 MPa. Als die Leckage in der 11^{3/4}-Zoll Verrohrung auftrat, war die Umgebung der Bohrung plötzlich einem Druck von 7,5 MPa ausgesetzt, der sowohl die Vertikalspannung als auch die minimale und die maximale Horizontalspannung deutlich überschritt. Hydraulische Risse können damit in jeder Raumlage entstehen. Ob präexistente Klüfte und Störungen maßgeblich sind, ist bei der vorhandenen Datenlage nicht eindeutig zu klären. Mit zunehmender Entfernung baut sich der Druck im Riss ab und der Riss breitet sich nicht weiter aus, sobald die minimale Normalspannung auf den Riss größer wird als der Druck im Riss. Die Geometrie der Ausbrüche deutet darauf hin, dass die Rissfortpflanzung in NW-SE Richtung (N125°E) erfolgte. Der Ausbruch endete, als etwa 60 bis 80 % der Kaverne entleert war. Bei einem anfänglichen Druck von 7,5 MPa entspricht dies einem Restdruck von 1,5 MPa bis 3,0 MPa.

3.5 Havarien bei der Speicherung von Kohlenwasserstoffen (KW) in Salzformationen (IfG)

3.5.1 Kompilation von Risiko-Faktoren

Für die Untertage-Gasspeicherung in Solkavernen ist eine einfache Risikoanalyse aufgrund der komplexen Eigenschaften als Einflussfaktoren auf stattfindende Prozesse nicht möglich, was hier auch nicht im Fokus steht. Der wirtschaftliche und sichere Betrieb eines Kavernenspeichers ist an die Einhaltung bestimmter geologischer (Abbildung 79), gebirgsmechanischer und technischer Kriterien (Abbildung 80) gebunden, die im Folgenden kurz skizziert werden. Daraus lassen sich (ohne Anspruch auf Vollständigkeit) Risikoszenarien ableiten:

- <u>Geologische Kriterien</u> beziehen sich auf die räumliche Ausdehnung des Salinarvorkommens, das heißt, welche Teufenlage und Mächtigkeit sowie welche laterale und vertikale Ausdehnung der auszusolende Steinsalzbereich besitzt und welche Zusammensetzung das Steinsalz hat - beispielsweise wie hoch der Anteil an unlöslichen Feststoffen bzw. an besonders leicht löslichen Kalium-/Magnesiumsalzen ist.
 - ⇒ Risikoszenarien: Verringerung von Sicherheitspfeilern zu den Rändern der Struktur oder benachbarten Hohlräumen, die zur Ausbildung eines Transportweges für Gasdurchtritt führen können (z.B. Clovelly and Napoleanville, Louisiana)

Homogene Salzformationen

Die Stabilität und Integrität hängen nur von den Salzeigenschaften ab.



Inhomogene Salzformationenen



Abbildung 79: Integrität eines Salzspeicher in Abhängigkeit von geologischen Strukturen der Salzformation: homogen (steile/flache Lagerung) vs. inhomogen (flache Lagerung mit "Zwischenmittel" / tektonisch induzierte Überprägung mit/ohne Ablaugung (nach Gillhaus, 2007).

- <u>Gebirgsmechanische Kriterien</u> entstanden aufgrund der langjährig erprobten Nachweiskonzepte und unter Berücksichtigung der grundlegenden Versagensprozesse mit Integritätsverlust, der festgelegten Anforderungen bzgl. Sicherheitsabstände zwischen benachbarten Speicherkavernen, der Kavernengeometrie und Sicherheitsabstände zu den Grenzen der Lagerstätte sowie der Betriebsparameter bzgl. des zulässigen Speicherregimes.
 - ⇒ **Risikoszenarien:** Integritätsverlust der geologischen Barriere mit Bildung von Wegsamkeiten, die abhängig vom Überdruck über langsame Perkolationsprozesse bis hin zu Extremszenarien wie Gas-Frac mit Blow-Out führen können. Damit verbunden sind große und unter Umständen dynamische Senkungen

- <u>Technische Kriterien</u> umfassen im Wesentlichen die Ausführung der Bohrungen mit Verrohrung/Zementation/Linern von Übertage, die die im Speicherbetrieb auftretenden Wechselbelastungen infolge Druck- und Temperaturänderungen dauerhaft ertragen können sowie technisch dicht sind. Hinzu kommen das Speicherdesign (Hohlraumgeometrie und Teufenlage) sowie die Übertageeinrichtungen, die nicht weiter betrachtet werden.
 - ⇒ Risikoszenarien: Integritätsverlust der technischen Bohrlochinstallationen mit Gasübertritt in die geologische Barriere unter Bildung von Wegsamkeiten oder Sekundärspeichern

Eine generelle Wichtung der Relevanz von Risikofaktoren ist aufgrund der Komplexität möglicher Ursachen sowie der insgesamt geringen Anzahl von Ereignissen nicht möglich.



Abbildung 80: Bohrlochzustand nach Wegschneiden der Altrohrtour vor Re-Installation – Beispiele für unzureichende Bohrloch-Zementierung aus Video-Kamera-Befahrungen (Fabig et al., 2015).

3.5.2 Globaler Rückblick

Im Zuge der Risikobewertungen zur Wahrscheinlichkeit von Havarien im Zusammenhang mit der Speicherung von Kohlenwasserstoffen in untertägigen Hohlräumen in Salzformationen wurden im letzten Jahrzehnt zahlreiche systematische, internationale Reviews zu Versagensfällen von KW-Speichern in Salzformationen durchgeführt (z.B. Evans, 2008). Dabei wurden im Zeitraum zwischen 1972 bis etwa 2012 insgesamt weniger als 30 Ereignisse identifiziert, bei denen es zu erheblichen Gesundheits- und Sicherheits-relevanten Einwirkungen kam. Die wichtigsten Versagensfälle sind in Tabelle 18 zusammengefasst.

Obwohl die Ursachen für Havarien sowie die dadurch ausgelösten Prozesse ausgesprochen komplex sind, dokumentiert die Analyse die kritische Rolle des Bohrloch-Casings, die als Ursache der Havarien identifiziert wurde. Sie resultieren zumeist aus technischen Handhabungsfehlern beim Einbau bzw. der Revision der Rohrtour, womit Schwächestellen angelegt wurden, die im Rahmen der Qualitätsüberwachung nicht erkannt wurden. Gleichzeitig wurden Hinweise beim Speicherbetrieb (temporärer Druckabfall) im Hinblick auf potentielle Havarien (Leckagen) nicht richtig gedeutet.

Als Resümee folgt aus der Analyse von Schadensfällen: Es handelte sich hauptsächlich um technisch/menschlich induzierte Havarien (vor allem im Bereich der technischen Komplettierung) und soltechnische Probleme mit Reduzierung von Salzbarrierepfeilern infolge geologischer Inhomogenitäten. Ein primäres Versagen der geologischen Barriere Salz ist bei Einhaltung der geologischen und gebirgsmechanischen Kriterien nicht bekannt.
Tabelle 18: Havarien in Verbindung mit Öl- oder Gas-Speicheraktivitäten in Salzformationen (nach Warren, 2016)

Kavernen- speicher	Zeitpunkt und Ort der Havarie	Speicher- medium	Unfall- beschrei- bung	Unfallursache	Wirtschaftlicher Schaden	Reichweite / Maß der Beeinträchtigung Opfer
Petal City	1974, Mississippi, USA	Butan (flüssig)	Feuer & Explosion	Menschlicher Fehler, der zur Überfüllung führte	Häuser bis zu 7km Entfernung zerstört	Einwirkungsbereich ca. 7km; 3000 evakuiert 24 Verletzte
West Hackberry (no. 6 cavity)	1978, Louisiana, USA	Petroleum	Feuer & Blowout	Packerversagen während eines Casingwechsels (Handhabungsfehler)	Austritt von ca. 72.000 bbls Rohöl (mehr als 11.446 m ³), Gesamts- chaden: ca. 14-20 Mio. US \$	Mit Öl verschmutzter Bereich: ca. 90.000 m ² 1 Toter, 1 Verletzter
Mont Belvieu (Barbers Hill) - Größter LPG- Speicher USA	1980, Texas, USA	Propan (flüssig)	Feuer & Explosion	Rohrtourversagen infolge Korrosion	Austritt von ca. 23 Mio. m ³ Propan	75 Familien (300 Personen),evakuiert für 180 Tage >1 Toter
Conway	1980-2002, Kansas, USA	Propan (flüssig)	Gasleck ins Grundwasser	Wasserführende Hutgesteine	Gaszutritt in Bohrungen bzw. Iokalem Grundwasser, vermutlich verursacht durch Lösungsprozesse im Deckgebirge	Nähere Umgebung der Speicherkaverne, 30 Häuser gekauft, 110 Personen umgesiedelt
Mont Belvieu	October, 1984, Texas, USA	Propan (flüssig)	Feuer & Explosion	Rohrtour-Versagen	Verlust von mehreren Mio. US \$	
Mont Belvieu	November, 1985, Texas, USA	Propan (flüssig)	Feuer & Explosion	Durchtrennen der Versorgungs-Pipeline	110 m³ des Propansverbrannt und eingroßerAnteilentwichen	Mehr als 17.000 Personen evakuiert
Viriat	1986, Frankreich	Äthylen	Gaswolke	Übertage-einrichtungen tw. zerstört	Gesamtes Gas freigesetzt	
Teutschenthal	1988, Halle, Deutschland	Äthylen	Aufreißen von Spalten im Salz bzw. Deckgebirge	Rohrtour-Versagen	60-80 % des Äthylens sind ausgetreten	Ein Bereich von ca. 8 km ² wurde evakuiert
Clute	1988-1989, Texas, USA	Äthylen	Gasaustritt	Planungsfehler bei Tief- bohrung (Anbohren) resultierte in Dichtheits- verlust	Austritt von mehr als 20.000 m ³ Äthylen	10 Familien evakuiert
Brenham	1992, Texas, USA	Flüssiggas (LPG)	Feuer & Explosion	Überfüllung und Ventilversagen	332.000 barrels (about 52,500 m ³); Schaden: 5,4 Mio. US \$ & Schadensersatz: 1,38 Mio. US \$	Ungefähr 3 km um die Anlage, 26 Häuser zerstört
Mineola	1995, Texas, USA	Propan	Feuer im Untergrund und an der Oberfläche	Zu geringe Barrieren- mächtigkeit: Doppelkaverne mit Gasfrac bei Integritätstest mit Stickstoffinjektion.	Zyklischer Kavernenbetrieb führte zur Verbindung benachbarter Kavernen mit Druckaufbau und Casing-Leckage	Die 2 Kavernen und ein Radiusbereich von ca. 15m an der Oberfläche
Yaggy (Hutchinson Explosion)	2001, Kansas, USA	Erdgas	Feuer & Explosion	Beschädigung des Casings infolge Beanspruchung	Verlust von > 5.600.000 m ³ Erdgas. Gas trat in alten Sole- Rohrköpfen auf. Klage in Höhe von 800 Mio. US-Dollar.	Teile der Stadt beeinträchtigt, ca. 250 Leute evakuiert. 2 Tote
Fort- Saskatchewan (above ground accident)	2001, Saskatchewan, Canada	Äthylen	8 Tage andauerndes Feuer	Versagen einer Ver- bindungspipeline zwischen 2 Kavernen- bohrungen (Kaverne 103)	Verlust von ca. 14.500 m ³ Äthylen	unmittelbarer Bereich in der Umgebung der Anlage
Magnolia	2003, Louisiana, USA: nahe Napoleonville	Erdgas	Gasaustritt	Casing-Versagen	Austritt von mehr als 1.000.000 m ³ Erdgas	Mehr als 30 Personen evakuiert aus der Umgebung vom Erdfall Grand Bayou
Odessa	2004, Kansas, USA	Propan (flüssig)	Gasaustritt	Defekt in den Untertageanlagen	Austritt von mehr als 90.000 kg flüssiges Propan	
Clute	2004, Texas, USA	Äthylen	Feuer & Explosion	übertägige Bohrmaß- nahme, gefolgt von Dichtheitsverlust		10 Familien evakuiert
Moss Bluff	2004, Texas, USA	Erdgas	Feuer & Explosion (300m hohe Flamme)	Korrosion der Rohrtour durch Sole, Schäden an Bohrlochverrohrung	Verlust von Gasvolumen in Höhe von mindestens 36 Millionen US \$	Einflußbereich ca. 120m- Radius, mehr als 1000 Personen im Umkreis von 5km evakuiert.

3.6 Labortechnische und numerische Untersuchungen der Integrität von Salzkavernen (IfG)

3.6.1 Experimentelle Untersuchungen

Das experimentelle Untersuchungsprogramm ist bzgl. seiner Schwerpunkte und des Probenmaterials bzw. der eingesetzten Prüfsysteme in Tabelle 19 schematisch dargestellt. Dabei wurden sowohl Steinsalz (in unterschiedlicher Ausbildung), Bohrlochzement (BZ) und synthetische Proben mit Kontaktflächen, u.a. BZ/Salz, BZ/Stahl bzgl. Haftzug- und Scherfestigkeiten untersucht.

Tabelle 19.: Untersuchungsprogramm (Kurzfassung) und eingesetztes Untersuchungsequipment



3.6.1.1 Untersuchungen an Steinsalz – Einfluss potentieller Trennflächen

Steinsalz ist in der Vergangenheit bzgl. seines Festigkeits- und Schädigungsverhalten sehr intensiv untersucht worden. Exemplarisch sind in Abbildung 81 Ergebnisse der Festigkeits- und Dilatanzuntersuchungen in der Triaxialzelle von Werra-Steinsalz dargestellt. Die Festigkeitskurven zeigen mit zunehmendem Manteldruck die Zunahme der Festigkeit und Verformbarkeit, mit einem Wechsel von bruchhafter zu immer mehr duktiler Verformung, die auch in der Dilatanz-Entwicklung dokumentiert ist. Bei Einspannungen ($\sigma_3 > 5$ MPa) wird Rissbildung weitestgehend unterdrückt.

Obwohl Salzformationen bezüglich ihres Mineralbestands sehr homogen sind (Steinsalz weist Halit-Gehalte von 90 bis ca. 98 % auf) können die akzessorisch auftretenden Minerale oder Verunreinigungen (z.B. Anhydrit, Tonminerale) Trennflächen ausbilden. Letztere sind für Geomaterialien von entscheidender Bedeutung für die resultierenden Eigenschaften des Gebirges, z.B. für die Bewertung der Firstflächenstabilität im Salzgebirge. Im Unterschied zu Felstrennflächen an Diskontinuitäten und Schichtflächen im Salzgebirge sind neben Reibungsvorgängen zusätzlich Kohäsions- und Haftreibungseigenschaften von besonderer Bedeutung.



Abbildung 81: Festigkeits- und Dilatanzverhalten von Steinsalz (Mittleres WerraSteinsalz) im triaxialen Druckversuch: (links) Triaxiale Druckfestigkeitskurven und (rechts) Dilatanzkurven für verschiedene Manteldruckstufen (aus Knöfel, 2018).

Salzgesteine besitzen bereits unter normalen bergbaulichen Belastungsbedingungen in bedeutendem Maße die Fähigkeit zur Reaktivierung von Adhäsions- bzw. Kohäsionskräften an den Trennflächen bzw. Schichtflächen. Der Wechsel von Haft- und Gleitreibungszuständen wird als stick-slip-Bewegung bezeichnet. Eine Entfestigung wird durch Haftreibungsverlust und das Abscheren von Unebenheiten bei zunehmender Scherverschiebung bewirkt. Eine umfassende Beschreibung des mechanischen Verhaltens des Salzgebirges ist daher nur unter Einbeziehung entsprechender Scherfestigkeitsmodelle für Schichtflächen möglich.

Allerdings sind in der Literatur umfassende experimentelle Untersuchungen der Haft- und Trennflächen von Salzgesteinen unter Berücksichtigung Verformungsgeschwindigkeits-abhängiger Effekte bzw. unter dynamischen Beanspruchungen (z.B. mechanischen Fräsarbeiten in der Hohlraumfirste oder bei schnellen Speicherdruckänderungen) bisher sehr selten. Im Rahmen der Diplomarbeit Knöfel (2018) wurde eine umfassende, vergleichende Charakterisierung der Eigenschaften von potentiellen Trennflächen in verschiedenen Salzgesteinen (von unterschiedlichen Lokationen) sowie der Steinsalzmatrix durchgeführt:

- (Typ 1) Steinsalz mit deutlichen Tonlöserhorizonten bzw. Schichtflächen scharfer Kontaktübergang-Teilblöcke und Kernmaterial Hangendes Steinsalz (Herkunft: Region Katalonien in Spanien) → Einfluss von Tonlösern
- (Typ 2) Werra-Steinsalz (z1) mit nur diffuser Schichtung bzw. dünne Anhydritschnüre im Steinsalz (Herkunft: Bergwerk Merkers) → Weitgehend kompaktes Material
- (Typ 3) Salzgestein mit Materialwechsel Steinsalz/Carnallitit deutlicher Schichtübergang (Herkunft: Bergwerk Merkers) → Materialwechsel

Bzgl. der Schichtflächen/Tonlöser-Eigenschaften fokussierten sich die Untersuchungen auf die Varietät Typ 1. Als Ergebnis der Scherfestigkeitsuntersuchungen an den Tonlöserhorizonten ergibt sich das in der nachfolgenden Abbildung 82 dargestellte Scherspannungs-Normalspannungs-Diagramm. Dieses zeigt eine für das Material charakteristische Festigkeitskurve und Restfestigkeitsgerade. Die im Diagramm enthaltenen Datenpunkte stammen ausschließlich aus zweistufigen Scherversuchen, die mit konstanter Normalspannung und einer "Standard-Schergeschwindigkeit" von 0,002 mm/s gefahren wurden. Bei der Auswertung der Scherversuche wurden jeweils die Bruchbilder berücksichtigt, sodass nur Versuche einbezogen wurden, die deutlich in einer potentiellen Trennfläche, also im zuvor intakten Tonhorizont versagt haben.



Abbildung 82: Ergebnisse der Scherfestigkeitsuntersuchungen an geschichtetem Steinsalz Typ 1. (li.) Scherspannungsdiagramm: Peak- und Restfestigkeiten, (re.) Fotografische Dokumentation einer Beispielprobe: Steinsalz mit eng-geschichteten Trennlinien und der Scherfläche nach dem Versuch (aus Knöfel, 2018).

Ein wesentliches Ergebnis ist (hier dargestellt), dass die Scherfestigkeit immer von der Belastungsrate abhängt (quasi-statische vs. dynamische Belastung). Über drei Scherversuche mit unterschiedlichen Belastungsraten (langsam: $2,0.10^{-5}$ mm/s; Standard: $2,0.10^{-3}$; schnell: 10 mm/s) ergaben sich max. Scherfestigkeits-Peaks von:

- langsam: 7,1 MPa;
- standard: 7,8 MPa und
- schnell: 8,2 MPa.

Dies entspricht qualitativ den Ergebnissen aus triaxialen Festigkeitsuntersuchungen, bei denen ebenfalls die Verformungsrate variiert wurde, was grundsätzlich bedeutet, dass in den konventionellen Festigkeitsuntersuchungen die Festigkeiten überschätzt wird.

Die mechanische Zugfestigkeit im Salzgebirge variiert von quasi 0 (Tonlöser) über 0,5 bis ca. 1 MPa (Steinsalz mit schichtartigen Anhydrit-Einschaltungen bis ca. 2 MPa für homogenes bzw. nur diffus verunreinigtes Steinsalz).

Die Untersuchungen belegen exemplarisch,

 dass die geomechanischen Eigenschaften von Salzgesteinen unter den bei Gasspeicherung wirkenden Einwirkungen, die abhängig von den Spannungs- und Verformungsrandbedingungen zu lokalen Schädigungen führen können, hinreichend charakterisiert werden können

 \Rightarrow Eine zuverlässige Ableitung von Gesteinsparametern für Salz ist möglich.

 dass lithologische Ausprägungen und Eigenschaften, wie z.B. natürliche Trennflächen im Salzgebirge (vor allem im geschichteten Steinsalz) Gesteinscharakteristika sind, die wesentlich die Eigenschaften des Salzgebirges bestimmen, wie Festigkeitseigenschaften einer Hohlraumkontur oder die Durchlässigkeit. \Rightarrow Die aus Gefügeinhomogenitäten resultierenden Anisotropieeffekte (Richtungsabhängigkeit hydraulisch/mechanischer Eigenschaften) werden aktuell in numerischen Modellierungen bei Integritätsbetrachtungen meist aufgrund nicht hinreichender Daten oder eines nicht ausreichenden Prozessverständnisses vernachlässigt.

3.6.1.2 Hydraulisch/mechanische Charakterisierung Bohrlochzement (BZ)

Zielstellung der Untersuchung war die Bestimmung mechanisch-hydraulischer Eigenschaften unterschiedlicher Bohrlochzementrezepturen als Matrix-Eigenschaften (Festigkeit/Dilatanz und Permeabilität) sowie die Bestimmung der Scherfestigkeit des Interfaces BZ/Salz bzw. BZ/Stahl. Die Ergebnisse sind exemplarisch in Abbildung 83 dargestellt.

Als Festigkeitsentwicklung ergibt sich mit zunehmender Einspannung, ausgehend von einaxialen Druckfestigkeit von $\sigma_D \ge 40$ MPa bis auf ein Plateau von ca. 60 MPa ab etwa 5 MPa Einspannung (Abbildung 83a). Gleichzeitig fallen hier Dilatanz und Festigkeitsgrenze zusammen, was hohe Sicherheitsreserven gegen mechanische Schädigung bedeutet. Die Permeabilität des Bohrlochzements beträgt bei kleinen Einspannungen ($\sigma_{iso} = 1$ MPa) ca. 10^{-17} m² und nimmt bis 10 MPa Einspannung um eine Größenordnung auf ca. 10^{-18} m² ab (Abbildung 83a). Das bedeutet hier liegt zwar ein dichter Baustoff vor, aber dessen Permeabilität ist mehrere Größenordnungen höher, als die des Salzgebirges.

Die Kontakteigenschaften zwischen Zement / Rohrtour (Stahl) sowie Zement / Salzgebirge wurden über "Synthetische" Proben (aufbetoniert auf eine Stahl- bzw. Salzprobe) als direkte Scherversuche zur Bestimmung der Scherfestigkeit der Interfacefestigkeiten unter Normalspannungen im Bereich von 0,15 MPa $\leq \sigma_n \leq 10$ MPa sowie über direkte Zugversuche untersucht.

Während sich der Kontakt BZ-Salz durch eine gute Kohäsion (C = ca. 2,5 MPa) und einen Reibungswinkel von ca. 38° auszeichnet, ist der Kontakt BZ-Stahl praktisch nicht vorhanden. Nur wenn eine gewisse Rauigkeit der Stahloberfläche vorliegt gibt es einen Reibungswinkel von ca. 29° ohne nachweisbare Kohäsion (Abbildung 83c). Diese Ergebnisse bestätigen die großen Technikumsversuche (EXP-1) des KIT-TP.

Da die Eigenschaften verschiedener Bohrlochzemente abhängig von der jeweils verwendeten Zementrezeptur (unter Zugabe verschiedener Additiva, u.a. zur Erhöhung der Fließfähigkeit) stark variieren können, sind die hier durchgeführten Laboruntersuchungen Indexversuche. Unabhängig davon dokumentieren sie die hohe Festigkeit und geringe Durchlässigkeit, wobei der Verbund Rohrtour/Bohrlochzement/Gebirge immer eine mechanisch/hydraulische Schwachstelle darstellt.



Abbildung 83: Ergebnisse Bohrlochzement mit den jeweiligen Versuchs- und Probenanordnungen: a) Triaxiale Druckfestigkeits- und Dilatanzgrenze Matrix, mit den Bruchfiguren mit Spröd-/Duktilübergang. B) Gas-Permeabilität; c) Scherfestigkeit Interfaces BZ-Salz und BZ-Stahl.

3.6.2 Numerische Modellierung

Zielstellung der numerischen Modellierung ist die modelltechnische Untersuchung der technischen Dichtheit des Verbundes Rohrtour-Zement-Steinsalz in der Kavernenbohrung unter Wirkung der Gebirgsspannung im Kavernendach sowie der konvergenzbedingten vertikalen Dehnungsbeanspruchungen bei saisonalen oder hochfrequenten Speichervorgängen.

3.6.2.1 Modellerstellung / Eingangsparameter / Berechnungsablauf

Für die Modellberechnungen wurden zwei geometrisch gleiche Typkavernen (600.000 m³), allerdings in unterschiedlichen Teufenlagen (Rohrschuh der letzten zementierten Rohrtour bei 600 m und 1200 m) betrachtet, wobei die Randbedingungen mit den entsprechenden Partnern (UNIPER SE, KIT) abgestimmt wurden (Abbildung 84). Die geotechnischen Randbedingungen sind damit repräsentativ für die meisten Gasspeicherkavernen in Deutschland.

Ausgehend von einer Firstteufe ist ein 85 – 90 m hoch gewölbter Kavernenhimmel, bei dem mit abnehmender Teufe die Querschnitte entsprechend eingezogen werden, erstellt worden. Um einen ausreichenden Abstand zum Rohrschuh zu gewährleisten, wurde eine Kavernenhalslänge von ca. 40 m (Typ 1) bzw. 20 m (Typ 2) belassen. Unterhalb des Kavernenhimmels schließt sich der zylindrische Kavernenteil an. Hier wurden Querschnitte von 80 m Durchmesser generiert. Die Form des unteren Kavernenbereiches entspricht der eines halben und liegenden Rotationsparaboloiden.



	Тур 1	Тур 2	
Teufe Rohrschuh	1200 m	600 m	
Länge Kavernenhals	40 – 50 m	20 – 30 m	
Volumen	600 Tm ³	600 Tm ³	
lzRt*	11 ¾ "	11 ¾ "	
Zementdicke IzRt*	38 mm	38 mm	
Speicherregime (pmax, pmin)	Basierend auf dem Wissen und den Erfahrungen betreffender Kavernenfelder		
	N. Germany	M. Germany	

*lzRT – letzte zementierte Rohrtour

Abbildung 84: Beschreibung der Modelltypen. Die vertikale Modellausdehnung beträgt 500 m in einem Teufenbereich von 1000 bis 1500 m (Typ 1) bzw. 380 m bis 880 m (Typ 2). Die horizontale Modellbreite beträgt 120 m.

Die Berechnungen zur Speicherintegrität wurden mit einem aufwändigen 3D-Modell durchgeführt. Dabei wurden als Simulationstool FLAC3D (ITASCA, 2013) und Rhinoceros® als 3D-Modellierer für die Generierung der Modellkaverne und Griddle 1.0 als Netzgenerator eingesetzt (Abbildung 85). Defacto wird ein (im Normalfall hexagonal angeordnetes) Kavernenfeld abgebildet, wobei hier ein einfacheres, rechtwinkliges Blockmodell mit 4 Nachbarkavernen angenommen wurde. Aufgrund der Symmetriebedingungen war es ausreichend, von der jeweiligen Kaverne nur ein Viertel zu modellieren.



Abbildung 85: Modellerstellung.

Verschiebungen normal zu den seitlichen Modellrändern und zur Modellbasis sind nicht möglich. An der Modelloberkante wurde eine Auflast entsprechend der in dieser Teufe wirkenden Vertikalspannung des überlagernden Gebirges aufgebracht. Das Modell umfasst annähernd 200.000 Elemente und wurde in seiner kompletten Teufe im Steinsalz angelegt. Der rückstandverfüllte Kavernensumpf wurde während der Simulation nicht berücksichtigt.

Die Rohrtour wurde in beiden Fällen nur bis in eine Teufe von 100 m oberhalb der Kavernenfirste umgesetzt. Alleine die Anzahl der Elemente im Bereich der Verrohrung beträgt ca. 35.000. In der kleinsten Ausdehnung besitzen die Zonen in diesen Bereich eine Breite von 1 cm. Für die Casinginstallation wurde im Modell eine einfache Verrohrung einer 11 ³/₄ "-Rohrtour angenommen. Die Zementationsdicke beträgt 3,8 cm. Die Verrohrung wurde im Modell mittels Liner-Elementen umgesetzt. Auf die Generierung der Bohrlochinstallation bis zur Modelloberkannte wurde bewusst verzichtet, da das Modell aufgrund der Elementanzahl nicht mehr rechenfähig gewesen wäre. Gleiches gilt für die Nutzung von Interfaces zwischen dem Zement und dem Steinsalz. Zu erwähnen ist, dass in diesem Modell die Rechengeschwindigkeit nicht durch die Anzahl der Elemente bestimmt wird, sondern vielmehr durch ihre Größe der Elemente und die thermo-mechanische Kopplung.

Die für die Simulation verwendeten Temperaturkurven wurden mit Hilfe der Salt Cavern Gas Storage Toolbox (SCGS Toolbox) von RESPEC berechnet (RESPEC, 2004). In die SCGS Toolbox ist ein Salt Cavern Thermal Simulator (SCTS) integriert, der es ermöglicht, komplette thermische und thermodynamische Abläufe zu erstellen und zu evaluieren.

Als Basis dienten *in-situ* Messungen und Temperaturkurven realer Speicher. Unter Annahme für die Kavernenteufen typischer Speicherbetriebsparameter (minimaler und maximaler Speicherdruck, Einund Ausspeicherraten) wurden die Temperaturkurven für den Kavernenhohlraum berechnet. Zur Abschätzung der Wärmeübertragung zwischen der Kaverne und dem umgebenden Salzgebirge wird eine implizit integrierte Finite-Differenzen-Methode angewendet. Dabei wird das die Kaverne umgebende Salz in sphärisch angeordnete Elemente diskretisiert und mit RESPEC (2004) berechnet. Das Programm berechnet den Kaverneninnendruck und die anliegenden Temperaturen im Verlauf von Solphase, Soleentleerung und Gaserstbefüllung sowie während eines vorgegebenen Speicherbetriebes. So ermittelte Temperaturkurven wurden im mechanischen Modell als Randbedingungen auf die Kavernenkontur aufgebracht (s. Beispiel Typ 1, Abbildung 86). Für beide Typkavernen wurde eine saisonale und eine hochfrequent überprägte saisonale Speicherfahrweise simuliert.



Abbildung 86: Betriebsdaten entsprechend Speicherregime für Modellierung (Beispiel Typ 1). (li.) Temperaturrandbedingungen als Basis für RESPEC-Toolbox, (re.ob.) Berechnetes zeitliches Druck- und Temperaturregime in der Kaverne, (re. unt.) Volumen-/Druck-Bilanz während Gasinjektion und Ausspeicherung.

Die Betriebsparameter (Minimal-, Maximaldruck) wurden aufgrund von Erfahrungswerten für Kavernen in ähnlicher Teufenlage abgeleitet:

•	Kaverne Typ 1:	Primärspannung = 24 MPa;	Rohrschuhdruck: 204 bar
---	----------------	--------------------------	-------------------------

• Kaverne Typ 2: Primärspannung = 14 MPa; Rohrschuhdruck: 120 bar

Der Speicherdruck weist dabei immer eine Sicherheitsreserve (15 % Sicherheit) gegenüber dem angreifenden Gebirgsdruck auf. Für den Kavernentyp 2 ist der angesetzte Speicherdruck gegenüber dem Gebirgsdruck knapp bemessen (Maximaldruck + Sicherheit entspricht initialen Gebirgsdruck). Vergleichend dazu liegt der Druck im Berechnungsfall 1 unterhalb der primären Gebirgsspannung.

Die erforderliche Parametrisierung zur Beschreibung des Festigkeits- und Verformungsverhaltens des in den gebirgsmechanischen Modellen abgebildeten Staßfurt-Steinsalzes, einer exemplarischen Zementcharge und des Stahlliners erfolgte auf der Basis von Datensätzen, die bereits vom IfG - Leipzig bei anderen gebirgsmechanischen Aufgabenstellungen erprobt wurden. Dabei wurde ein visko-elastoplastisches Stoffmodell von Minkley verwendet (für Details s. Minkley, 2004). Die elasto-plastischen Parameter des Staßfurt-Steinsalzes und deren viskoses Verhalten, welches über das im Minkley-Modell enthaltene BURGERS-Modell modelliert wird, sind in Tabelle 20 zusammengefasst.

Elastizitätsp	parameter	Fe	estigkeitsgrenze	
E [GPa]	ν	$\sigma_{ extsf{D}}$ [MPa]	σ_{max} [MPa]	σ_{ϕ} [MPa]
24,8	0,24	33,0	53,0	2,0
Kelvin-ł	Körper	N	laxwell-Körper	
G ^к [MPa]	η ^κ [MPa⋅d]	G ^M [MPa]	η ^м [MPa·d]	m [MPa⁻¹]
3,45·10⁵	3,84·10 ⁴	1,28·10 ⁴	1,05·10 ⁷	0,2

Tabelle 20: Elasto-plastische und Kriechparameter des Staßfurt-Steinsalz (Na2).

Ausgehend von den aus den Scherversuchen ermittelten Mohr-Coulomb Parametern sowie vorhandenen IfG-Datensätzen wurden für die Kontaktflächen zwischen Steinsalz und Zement bzw. Zement und Stahl zur Modellierung Parameter nach Tabelle 21 eingesetzt

Tabelle 21: Kontaktflächenparameter.

Kontakt	Kohäsion C [MPa]	Reibungswinkel ø
Zement/Salz	2,5	38°
Zement/Stahl	0,5	29°

Die Berechnungen erfolgen schrittweise:

- 1. Berechnung des Primärspannungszustandes vor der Solung unter Annahme eines mittleren Teufendruckgradienten für das Deckgebirge bzw. Salinar; Validierung des Modells anhand bekannter Erfahrungswerte bezüglich Kriech- und Konvergenzraten
- 2. Simulation der Kavernensolung (Zeitraum ca. 3 Jahre): Das Aussolen der Kaverne erfolgt im numerischen Modell durch Herausnahme der entsprechenden Elemente. Gleichzeitig wird auf die betreffende Kontur eine hydraulische Druckrandbedingung analog zu einer bis übertage reichenden Solesäule aufgebracht. Der so entstandene Spannungs- und Verformungszustand stellt die Ausgangsbasis, u.a. für die Bewertung des Gebirgsdruckaufbaus im Verbund Zementation-Rohrtour-Steinsalz dar.
- Simulation Betriebsphase Vergleich: saisonal / hoch-frequent; Dauer der Betriebszeit bis zu 30 Jahren; Spannungsaufzeichnung im Bereich der LzRT (letzte zementierte Rohrtour) entlang eines vertikalen und eines horizontalen Profils → Randbedingungen für detailliertes Modell
- 4. Simulation der Betriebsphase anhand des detaillierten Modells (skalierter Ausschnitt des Bereiches um die LzRT mit Casing-Installation) Vergleich: saisonal / hoch-frequent;
- 5. Auswertung der Ergebnisse und Verifizierung des Modells \rightarrow weitere Rechendurchläufe

Bei der Durchführung der Modellrechnungen zeigte sich, dass aufgrund (1) der feinen Vernetzung und (2) der thermo-mechanischen Kopplung die Rechenläufe extrem zeitaufwändig waren, wobei für einen Modelllauf, selbst unter Beschränkung auf einen Modellzyklus von 1 Jahr, mehrere Monate Rechenzeit erforderlich waren.

3.6.3 Bewertung Geologische Dichtheit Salzkaverne bei maximalem Speicherdruck pmax

Grundlage für die Bewertung der Dichtheit sind die im Modell berechneten Spannungszustände, die sich im Verlauf der Betriebsphasen beim jeweiligen Anstehen des maximalen Speicherdrucks p_{max} in dem die Kaverne umgebenden Salzgebirge ausbilden. Die Dichtheit der Kaverne ist dann gewährleistet, wenn die Kavernen immer von einer ausreichend bemessenen Zone umgeben sind, in der die minimale Druckeinspannung σ_{MIN} um 10 % größer ist als der maximale Speicherdruck p_{max} . Als Vorbemerkung, für beide Typen Modellkavernen ergeben sich für den zyklischen oder saisonalen Speicherbetrieb, keine signifikanten Unterschiede, wohl aber für die Bewertung der Integritätskriterien für beide Typkavernen, die jeweils in 600 m oder 1200 m (Teufe Rohrschuh, bei gleicher Geometrie) angelegt sind.

Für die Typkaverne 1 (unabhängig vom Speicherregime zyklisch/saisonal) wird weder im Pfeiler- noch im Hangendbereich das Kriterium der Minimalspannung verletzt (vgl. Abbildung 87, zyklische Belastung). Die Bereiche, in denen das Kriterium der Dichtheit verletzt ist, sind relativ konturnah um den Kavernenhohlraum angeordnet und beschränken sich auf wenige Meter. Der Maximaldruck von 204 bar für Typ 1 ist bezogen auf den Kavernenhohlraum mit Sicherheit gewährleistet und zulässig.



Abbildung 87: Bewertung Dichtheit bei p_{max} : Typ 1 zyklisch (Teufe Rohrschuh: 1200 m): Bewertung Kaverne bei p_{max} = 204 bar nach 1 Jahr. In den beiden linken Abbildungen sind die Magnituden der maximalen und minimalen Hauptspannungen für die Typkaverne 1 dargestellt.



Abbildung 88: Bewertung Dichtheit bei p_{max}: Typ 2 zyklisch (Teufe Rohrschuh 600 m): Bewertung Kaverne bei p_{max} = 120 bar nach 1 Jahr. In den beiden linken Abbildungen sind die Magnituden der maximalen und minimalen Hauptspannungen für die Typkaverne 2 dargestellt.

Die Berechnungsergebnisse für den Typkaverne 2 sind qualitativ ähnlich, weichen aber im Detail, insbesondere für den Bereich oberhalb des Kavernenhimmels, etwas ab (vgl. Abbildung 88). Im Pfeilerbereich liegen ebenfalls ausreichend hohe Gebirgsspannungen vor, so dass auch hier eine Dichtheit des Gebirges gewährleistet ist. Für den Bereich im Hangenden der Kaverne zeigt sich aber, dass die dort ausgewiesene Zone mit abgesenkten Spannungen, wie sie zuvor ebenfalls für Typ 1

beobachtet wurde - allerdings mit hinreichendem Sicherheitsabstand-, bis dicht an den Kopfbereich der Kaverne heranreicht. Damit wird formal für diesen Bereich eine Verletzung des Minimalspannungskriteriums ausgewiesen, was somit eine gewisse Undichtheit gegenüber dem Überlagerungsgebirge suggerieren würde.

Diese Beobachtung für die Typkaverne 2 wird aufgrund der Ergebnisse vergleichbarer Untersuchungen, bei denen eine entsprechend ausgedehnte und an die Kaverne anschließende Entlastungszone nicht auftrat, als nicht realistisch eingeschätzt. Es konnte allerdings innerhalb der Untersuchungen nicht abschließend geklärt werden, ob diese Undichtheit modellbedingt (Bohrloch nur bis 100 m oberhalb der Firste generiert – woraus ein simples rechentechnisches Artefakt resultieren würde) oder aufgrund des für die vergleichsweise geringe Teufenlage grenzwertig bemessenen maximalen Speicherdruckes hervorgerufen wurde. Bezogen auf die Bewertung der Casinginstallation, mit Bewertung der Spannungsverhältnisse (s. u.), stellt dieser Berechnungsfall sozusagen ein Worst Case Szenario dar.

3.6.4 Bewertung Dichtheit / mechanische Integrität Casing-Installation

Die Bewertung der Einhaltung wesentlicher Integritätskriterien, u.a. Dichtheit geologische Barriere und mechanische Integrität des Bohrlochcasings, erfolgt über die sich bei der Speicherung ändernden Spannungs- und Verformungsregime im Bereich des Casings, wobei hier eine extrem hoch aufgelöste Vernetzung im Modellaufbau gewählt wurde (vgl. Kap. 3.6.2.1)

3.6.4.1 Bewertung der Dichtheit der letzten zementierten Rohrtour (IzRT)

Die Einhaltung der Anforderung an die geologische und technische Dichtheit der IzRT ist an die ausreichend hohe Gebirgsdruckeinspannung gebunden. Wie exemplarisch für den Typ 2 (zyklische Belastung) in Abbildung 89 gezeigt, werden infolge der (hier angenommenen) Ausbildung eines ideal gewölbten Himmelsgewölbes bei der Anlage einer Kaverne oberhalb der Firste Spannungsumlagerungen initiiert, die die horizontale Einspannung des Verbundes Salz-Zement-Rohr beim Anstehen des maximalen Speicherdruckes garantieren.

Bezogen auf die reine Betrachtung der wirkenden Minimalspannung, ist diese in den Modellen im Bereich des Rohrschuhs der letzten zementierten Rohrtour (im Zement, Stahl und Steinsalz) höher als der wirkende Druck am Rohrschuh. Vertikale Spannungsprofile im Steinsalz am Übergang zum Zement zeigen, dass die Horizontalspannungen weitaus größer sind als der maximale Speicherdruck der auf den Rohrschuh wirkt. Es ist demzufolge davon auszugehen, dass der Gebirgsdruck ausreichend hoch ist, um einen dichten Verbund zwischen Salz, Zement und Rohr zu gewährleisten.



Abbildung 89: Bewertung Rohrschuh bei p_{max} = 120 bar: Typ 2 zyklisch, nach 1 Jahr. (li.) Minimale Hauptspannung (hauptsächlich horizontal in Richtung der Bohrung ausgerichtet), (Mitte) Bewertung der Integrität der Bohrlochzementation bzw. im Umfeld des Casings auf Basis des Minimalspannungskriteriums bei 10 % Sicherheit, (re.) Horizontalspannung, die radial als Einspannung auf den Bohrlochstrang wirkt.

Dies verhindert, dass entlang der Materialgrenzen Stahl/Zement bzw. Zement/Salz Fließwege für das Speichergas generiert werden können. Diese Festlegung ist allerdings nur gültig unter der Prämisse, dass der zulässige maximale Betriebsspeicherdruck eingehalten und nicht überschritten wird.

3.6.4.2 Bewertung potentieller Schädigungsprozesse im Bereich der letzten zementierten Rohrtour (IzRT)

Potentielle Schädigungsprozesse, die auf die Zementation der letzten zementierten Rohrtour einwirken, sind Druck- und Scherspannungen. Die berechneten vertikalen Spannungsprofile im Zement oberhalb des Rohrschuhs belegen, dass von einem Bruchversagen des Zementes während des Speicherbetriebes nicht auszugehen ist (Abbildung 90). Die ausgewiesenen Spannungsdeviatoren liegen weit unterhalb der Festigkeitsgrenze, die an verschiedenen Zementchargen im Labor ermittelt wurden.

Wird die Kaverne auf den minimalen Speicherdruck gefahren, werden das Gebirge und der Bereich um den Rohrschuh entlastet. Durch die rheologischen Eigenschaften des Salzgebirges erhöht sich die Kriechfreudigkeit unter diesen Druckbedingungen. Da der Zement im Gegensatz zum Steinsalz keine Kriecheigenschaften aufweist, kann es theoretisch zum Abscheren des Kontaktes Steinsalz-Zement aber auch des Kontaktes Stahl-Zement kommen. Aus Laboruntersuchungen konnten Kontaktflächeneigenschaften bezüglich Kohäsion und Reibungswinkel ermittelt werden, die als Grenzparameter für die Bewertung im Modell herangezogen wurden (vgl. Abbildung 83). In den Modellrechnungen wurden Spannungsprofile (Normalspannung σ_N gegen Schubspannung σ_τ) entlang der Kontaktflächen aufgenommen und gemeinsam mit den Laboruntersuchungen geplottet (Abbildung 91). Die Ergebnisse zeigen, dass die aus den Modellen ermittelten Werte unterhalb der Scherfestigkeiten liegen und somit unter den gefahrenen Belastungsbedingungen kein Abscheren an den Trennflächen zu erwarten ist.



Abbildung 90: Differenzspannungen ($\sigma_{max} - \sigma_{min}$) im Vergleich beider Typkavernen (Typ 1 und 2) gegenüber den Festigkeitskurven zweier unterschiedlicher Bohrlochzemente (IfG-Daten).



Abbildung 91: Scherbelastungen am Kontakt Salz/Zement bzw. Kontakt Stahl/Zement bei der Kaverne Typ 2 für saisonale Druckvariationen bzw. zusätzliche zyklische Variationen. Die Festigkeitskurven stammen aus den Laborversuchen.

3.6.4.3 Mechanische Beanspruchung infolge Kriechdeformationen

Für die mechanische Beanspruchung sind zu berücksichtigen:

- 1. das rheologische Verformungsverhaltens des anstehenden Steinsalzes unter Wirkung der der durch den Speicherbetrieb bedingten Differenzen zwischen dem Gasinnendruck in den Kavernen und dem im Speicherhorizont herrschenden Gebirgsdruck
- 2. die daraus resultierenden und mit zunehmender Standzeit anwachsenden Kavernenkonvergenzen
- 3. die dadurch induzierten Senkungsvorgänge an der Tagesoberfläche

Daraus bauen sich im zementierten Abschnitt der Förderrohrtour im Hangenden über der Kaverne Axiallasten bzw. Axialdeformationen auf, die bezüglich ihres Einflusses auf die Stabilität, Funktionssicherheit und Gasdichtheit der Bohrlochkonstruktion zu bewerten sind.

Die infolge der Hohlraumkonvergenz im Bereich der letzten zementierten Rohrtour induzierten vertikalen Dehnungen im Zement sind in Abbildung 92 dargestellt. Danach sind die relativen vertikalen Dehnungen nur gering und liegen bei 0,15 ‰ (Typ 1) und bei maximal 0,3 ‰ (Typ 2). Ausgehend von einem festen Verbund zwischen Zement und Salz sowie zwischen Zement und Stahl sind die Werte übertragbar auf das Salz und den Stahl im Modell. Prinzipiell hängt die maximal zulässige Dehnungsbeanspruchung von der Streckgrenze des verbauten Stahls ab. Als Erstbewertung wird davon ausgegangen, dass diese nicht überschritten wird. Die Beanspruchungen werden mit zunehmender Standzeit der Kaverne größer, dies wurde aber aufgrund des Zeitbedarfs für die Durchführung der Modellberechnungen mit den vorliegenden Modellen nicht weiterverfolgt.



Abbildung 92: Teufenabhängige Vertikaldehnungen im Bohrlochzement für Typ 1 und Typ 2.

Für die Bewertung der Integrität des Bohrlochstrangs während der Gasspeicherung ist die Wahrscheinlichkeit des Auftretens parallel zum Bohrloch ausgerichteter Wegsamkeiten, d.h. parallel zum Kontakt Steinsalz / Zement / Stahl, entscheidend. Das bedeutet, dass die sich abhängig vom Spannungsfeld ausbildende Rissgeometrie und eine mögliche Vernetzung entscheidend sind.

Wenn es aufgrund der verformungs- und spannungsbedingten Streckung des Stahls und der vertikal zum Bohrloch ausgerichteten Kriechbewegung des Steinsalzes (infolge der Hohlraumkonvergenz im Firstbereich der Kaverne) zu Schädigungen im Zement kommen sollte, werden sich Rissstrukturen immer horizontal im Zement (d.h. orthogonal zum Stahl) anordnen. Daraus folgt, dass die sich öffnenden Risse entlang des Bohrlochstrangs nicht miteinander konnektierend sind, während radial zum Bohrloch ins Gebirge nur eine eng begrenzte Saumzone vorliegt. Dazu trägt bei, dass die entgegen den Kontaktflächen Zement / Salz und Zement / Stahl im Modell herrschenden (und horizontal

wirkenden) Radialspannungen ausreichend hoch sind, dass es unter Einhaltung der Speicherbetriebsparameter zu keiner Öffnung der Kontaktflächen kommt. Damit wird ein Eindringen des Speicherfluids in den Ringraum, trotz der Generierung von horizontalen Dehnungsrissen im Zement, verhindert. Eine Gefährdung der technischen Installation ist demzufolge nicht zu erwarten.

3.6.4.4 Bewertung potentieller Schädigungsprozesse in den Salzpartien am Kontakt Salz/Zement oberhalb des Rohrschuhs

Infolge von Speicherdruckänderungen kommt es, sowohl bei saisonaler als auch bei hoch-frequenter Speicherdruckfahrweise im Bereich der letzten zementierten Rohrtour zu Spannungsänderungen, die zu Wechselbelastungen des Kontakts Salz/Zement oberhalb des Rohrschuhs führen. Dabei ist zu zeigen, dass keine dauerhaften Spannungszustände vorliegen, die zu einem Gasdurchtritt infolge einer Verletzung des Minimalspannungskriteriums führen können.

Zur Bewertung dieses potentiellen Versagenskriteriums wurden am Kontakt zwischen Steinsalz und Zement im Bereich kurz oberhalb des Rohrschuhs vertikale und horizontale Spannungsprofile in Form von History-Punkten aufgezeichnet. Die Ergebnisse sind qualitativ für beiden Typkavernen ähnlich, wobei die größten Effekte für den Typ 2 mit der Randbedingung "Zyklische Speicherung" ausgewiesen werden.

In Abbildung 93 ist für diese Konstellation der zeitliche Verlauf der Normalspannungskomponenten (S_H, S_T, S_V) dargestellt. Bereits kurz nach Anfahren auf den maximalen Betriebsspeicherdruck werden die Vertikal- (S_V) und Tangentialspannungen (S_T) abgesenkt. Es kommt dabei zu einer Spannungsreversion zwischen Horizontal- und Vertikalspannung bezogen auf die größte und kleinste Hauptspannung (σ_{min} und σ_{max}). Die Vertikalspannungen und Tangentialspannungen erreichen dabei ein Niveau, welches unterhalb des Kaverneninnendrucks liegt. Es entstehen sogenannte effektive Zugspannungen, da wegen $\sigma_{min} < p_{Bohrloch}$ im porösen Bohrlochzement Porendrücke wirksam werden können (Hinweis: für ungeschädigtes bzw. gering dilatant verformtes Steinsalz sind Porendruckeffekte vernachlässigbar).



Abbildung 93: Entwicklung der Normal- Spannungen am Kontakt Salz/Zement oberhalb des Rohrschuhs: Beispiel Typ 2 zyklisch.

Unabhängig davon ist festzuhalten, dass effektive Zugspannungen nur im nahen Konturbereich bzw. im unmittelbaren Bereich um den Rohrschuh auftreten. Da die Horizontalspannungen aber zu jeder Zeit größer sind als der anstehende Gasdruck, wird ein Eindringen von Gas in den Porenraum des Bohrlochzements verhindert.

3.7 Schlussfolgerungen und Empfehlungen auf der Basis der Geomechanische Untersuchungen zur Dichtigkeit von Salzkavernen

Energiespeicherung in Salzkavernen in Deutschland ist Stand der Technik und bietet darüber hinaus noch wesentliches Potential für eine verstärkte Nutzung für zukünftige Herausforderungen der Energiewende. Voraussetzung für derartigen Planungen ist eine grundsätzliche gesellschaftliche Akzeptanz, die darauf basiert, dass die Sicherheit der an der Tagesoberfläche lebenden Menschen nicht gefährdet wird Der Nachweis dafür erfordert das grundsätzliche Verständnis aller stattfindenden Prozesse, die neben den technischen Installationen vor allem die langzeitigen geotechnischen Wechselwirkungen der technischen Einbauten mit dem Hohlraum "Kaverne" im umgebenden Salzgebirge im zeitlichen Verlauf umfassen.

Ausgehend von einem literaturbasierten Überblick des vorliegenden Kenntnisstandes zur Gasspeicherung im Salz mit den geowissenschaftlichen und geotechnischen Grundlagen ist festzuhalten, dass die beim Gasspeicherbetrieb aufgetretenen Havarien in der Regel aus Problemen der technischen Installationen oder Bedienerfehlern resultierten und nicht aus einem ursächlichen Versagen der geologischen Barriere "Salz". Aus den geologischen Analoga-Untersuchung von Piewak & Partner und insbesondere der Untersuchung von Gasfracs kann geschlossen werden:

- 1. dass bei hohen Verformungsraten das Normalspannungskriterium verletzt werden kann und es zu sehr starken Gasausbrüchen kommen kann. Bei niedrigen Verformungsraten kann das Salz mit einer plastischen Verformung reagieren und der Gasdruck kann sich abbauen.
- 2. Wenn der Druck der Kaverne das Deckgebirge erreicht (beispielsweise durch Undichtigkeit der Verrohrungen im Deckgebirge), kann es zu Fluidverlusten mit Verlust der Integrität des Deckgebirges durch Fracs mit einer Reichweite von mehreren 100 m kommen.
- 3. Am Top der Salzlager kann es zu Freisetzung von großen CO₂-Mengen kommen, wenn eingeschlossenes Gas vom flüssigen in den gasförmigen Zustand übergeht. Dies kann bei Sprengungen oder Bohrungen Untertage vorkommen. Bei Bohrungen von Übertage, kann der Druck kontrolliert und ein sicherer Bohrpfad eingeschlagen werden, da bei bekannter Temperatur die Druckbedingungen exakt eingestellt werden könnten. Eine Anisotropie der Horizontalspannung bzw. Zugfestigkeit könnte gezielt für Fracs zur Entgasung genutzt werden. Eine Verhinderung der Verletzung der Integrität des Deckgebirges ist hierfür zwingend notwendig.
- 4. Bei langsamer Verringerung der Minimalspannung kann ein Frac des Salzes verhindert werden. Dies mag bei einer Verwahrung einer Kaverne mit Konvergenz ebenfalls zutreffen, wenn der Porendruckaufbau entsprechend langsam erfolgt.

Im Rahmen des Projekts wurden am IfG Interface-Eigenschaften (z.B. Scher- und Zugfestigkeit) von künstlich hergestellten Materialübergängen (Steinsalz/Zement; Rohrtour – Stahl / Zement) bestimmt. So konnten die beim IfG aus anderen Untersuchungen vorliegenden Datensätze verifiziert werden. Der Einfluss von im Salzgebirge vorkommenden geologischen Inhomogenitäten wurde untersucht und hat zum Ergebnis, dass diese als hydraulisch/mechanische Schwachstellen wesentlichen Einfluss auf das Salzgebirge haben können. Es wird daher empfohlen, diese Aspekte zukünftig bei geomechanischen Nachweisrechnungen realer Standorte verstärkt mit einzubeziehen.

Basis für die durchzuführenden Modellrechnungen sind experimentelle Indexversuche, mit denen sowohl Matrixeigenschaften (Festigkeit/Permeabilität) von Steinsalz und einem Standard-Bohrlochzement bestimmt wurden. Für die modelltechnische Nachweisführung wurden zwei unterschiedliche generische Kavernenmodelle (Tiefe Rohrschuh: Typ 1 - 1200 m und Typ 2 - 600 m) entwickelt, die damit die für Deutschland relevanten Teufen- und Größeneinheiten abdecken. Damit wurden für die Integrität von Salzkavernen wesentliche Einflussszenarien für saisonale und hochfrequente (zyklische Gasspeicherung) untersucht.

Für den Fall der in einer vergleichsweise geringen Teufe angelegten Modellkaverne (Rohrschuh bei 600 m) ließ sich die Integrität der Salzbarriere für die hier abgeleiteten Belastungsbedingungen mit einem grenzwertig bemessenen maximalen Speicherdruck (p_{max}) nicht zuverlässig nachweisen. Obwohl dies entgegen den Erwartungen eintrat und sich die Ursachen nicht eindeutig aufklären ließen, sollte in der Praxis der empfohlene p_{max} reduziert werden. Für alle anderen Szenarien wurde für die betrachteten Modellkonstellationen eine ausreichende Sicherheit, beispielsweise gegenüber einem Gasdurchtritt Kontaktfläche Salz/Bohrlochzement/Stahl bei realistischen Beanspruchungen, nachgewiesen.

Die vorliegenden Ergebnisse belegen damit, dass die unterschiedlichen Speichernutzungen (saisonal bzw. hochfrequent zyklisch) einen vergleichsweisen geringen Einfluss gegenüber der Teufenlage des Speichers haben. Voraussetzung ist immer die Einhaltung gebirgsmechanischer Vorgaben bezüglich maximaler und minimaler Betriebsspeicherdrücke und Ein- und Ausspeicherraten. Diese sind lokationsabhängig (Teufe, Gebirgsdruck, Kavernengröße etc.).

Trotz dieses insgesamt positiven Ergebnisses gibt es Einschränkungen aus denen Empfehlungen für zukünftige Untersuchungen resultieren. So wurde eine idealisierte Modellkaverne mit optimaler Firststruktur modelliert, wie sie für eine Kaverne in der steilen Lagerung (Salzstock) wegen der vorliegenden Lithologie und teilweise komplexen Tektonik allenfalls nur näherungsweise erreicht wird. In der Folge können lokal erhebliche Unterschiede (z.B. verschiedene Salzvarietäten, Inhomogenitäten infolge Materialwechsel und potentielle Trennflächen) auftreten, die u.a. im Konturbereich aber auch im Bereich der Rohrtour zu unterschiedlichem Verformungsverhalten führen können.

⇒ Empfehlung 1 für zukünftige Modellierungen: Einbau von Interface-Elemente in den Kontaktflächen, mit denen die Kontaktflächeneigenschaften realistisch dargestellt werden.

Der betrachtete Zeitraum umfasste nur ein Jahr. Vorliegenden Berechnungsergebnisse mit weniger detaillierten Rechenmodellen zeigen, dass sich bestimmte Faktoren (z.B. konvergenzbedingte Verformungen) bei zyklischer Beanspruchung zeitlich aufsummieren können, wobei allerdings, die jeweilige Amplitude degressiv ist.

⇒ Empfehlung 2 für zukünftige Modellierungen: Erstellung eine Langzeitprognose über die gesamte Nutzungsdauer durch Modelloptimierung und Erhöhung der Rechenkapazität (Leistungsfähigkeit)

In der Konsequenz erfordert eine geomechanische Nachweisführung zur Darstellung der langzeitigen Betriebssicherheit immer die Einbeziehung der tatsächlichen Standort-spezifischen Gegebenheiten, d.h. das geologische Modell mit der tatsächlichen Hohlraumgeometrie und den geplanten Speicherzyklen. Die Leistungsfähigkeit der vorliegenden Rechentools dazu wurde im Vorhaben demonstriert.

Verwertung der Ergebnisse

Die Ergebnisse der Untersuchungen haben gezeigt, dass dem Gesamtsystem von Gebirge-Zementation-Verrohrung und der Beanspruchung des Systems durch Verformungen (Konvergenzen verbunden mit Subsidenz und Spannungsänderungen) in Salzkavernen eine besondere Bedeutung zukommt. Im Einzelnen können sie zukünftig beitragen zur

- Bewertung der geologischen Dichtheit bei maximalem Speicherdruck p_{max}
- Bewertung geologische Dichtheit / Mechanische Integrität Bohrlochcasing f
 ür unterschiedliche Komponenten und Einflussszenarien
 - Dichtheit der letzten zementierten Rohrtour (IzRT)
 - o Bewertung potentieller Schädigungsprozesse im Bereich der IzRT
 - Mechanische Beanspruchung infolge Kriechdeformationen
 - Spannungsentwicklung in den Salzpartien oberhalb des Rohrschuhs

4 Unabhängige Überwachungsmöglichkeiten von Speichern, Prognosen von Oberflächendeformationen in Raum und Zeit

Beiträge zu den Arbeitspaketen Mod3, VGS 2 und VGS 3 durch KIT-GIK

4.1 Ziel und Aufgabenstellung

Die Ausgangshypothese des geodätischen Teilprojektes war, dass sowohl bei Kavernen- als auch bei Porenspeichern betrieblich bedingte Druckvariationen zu Subsidenzen und Hebungen führen, die ein direkter Ausdruck der im Bereich des Speichers und der darüber liegenden Schichten ablaufenden Deformationsprozesse sind. Damit sind Oberflächenbewegungen ein Abbild der im Untergrund ablaufenden geomechanischen Vorgänge. Zum Nachweis dieser Vorgänge sollten in Ergänzung zu klassischen markscheiderischen Vermessungsverfahren radarinterferometrische Analysen oberhalb eines Kavernenfeldes durchgeführt werden, um das Verschiebungsfeld mit möglichst hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung zu erfassen.

Nach dem zu Beginn des Projektes vorliegenden Wissensstand aus publizierten und eigenen Arbeiten zeigen Poren- und Kavernenspeicher ein unterschiedliches Verhalten:

- oberhalb von Porenspeichern wurden klare zyklische Bodendeformationen beobachtet, deren geringe Phasenverschiebung auf eine im Wesentlichen elastische Reaktion des Speichergesteins auf betriebsbedingte Druckänderungen hinweist;
- Das Verschiebungsfeld oberhalb von Kavernenspeichern weist eine kontinuierliche Senkungstendenz auf, die auf die fortschreitende Konvergenz der Salzkavernen zurückzuführen ist. Zyklische Variationen konnten bis Projektbeginn nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Die Linearität der bisherigen Beobachtungen von Senkungsraten über Kavernenspeichern deutete an, dass höherperiodische Druckänderungen sich nicht vollständig zur Oberfläche durchpausen oder Signalanteile bei der radarinterferometrischen Prozessierung anderen Phasentermen zugeschlagen wurden. Die Schätzung dieser Signalanteile wurde im Rahmen des Projektes durch verbesserte Analysealgorithmen unter Einbeziehung externer Datensätze wie Kavernendruck, Füllstände, Ein-/Ausspeicherungsvolumina etc. verbessert.

Die wesentlichen Ziele der durchgeführten Arbeiten waren:

- Detektion und Quantifizierung von linearen und zyklischen Oberflächenverschiebungen über Kavernenspeichern
- Nachweis eines physikalischen Zusammenhanges zwischen Oberflächenver-schiebungen und betrieblichen Druckänderungen im Speicherfeld
- Beurteilung der Eignung radarinterferometrischer Verfahren zum Monitoring von Untergrundspeichern

4.2 Das Untersuchungsgebiet

Das Kavernenfeld in Epe (Abbildung 94) ist aus einer Salzlagerstätte der niederrheinischen Salzfläche, die sich unter der Oberfläche der norddeutschen Tiefebene und eines Teils der Niederlande erstreckt, gesohlt worden. In der Nähe von Epe hat die Lagerstätte eine Mächtigkeit zwischen 200 und 400 Metern; die Oberseite der Salzschicht liegt in einer durchschnittlichen Tiefe von 1000 Metern. Die derzeit 114 Kavernen werden zur Soleproduktion und zur Lagerung von Erdgas, Helium und Erdöl von insgesamt 8 Unternehmen genutzt, die unabhängige Betriebsstrategien verfolgen. Die bergbaubedingten Auswirkungen an der Erdoberfläche werden regelmäßig mit Nivellements,

Grundwassermessungen und anderen Techniken überwacht. Für die Studie wurde das Potenzial der SAR-Interferometrie (InSAR) zum Monitoring linearer und zyklischer Bodenbewegungen über der Speicherstätte untersucht. Ein Schwerpunkt lag dabei auf der Beobachtung und Interpretation druckbedingter Oberflächenverschiebungen.



Abbildung 94: Überblick über das Kavernenspeicherfeld Epe in Nordrhein-Westfalen. Daten über Lage und Volumen der Kavernen, Tiefe der Salzschicht, Speichermedium und Betreiber wurden durch den Projektpartner SGM zur Verfügung gestellt, ebenso Daten der Wiederholungsnivellements in den Jahre 2015-2017 und Zeitreihen der Grundwasserpegel. Die Farbskala gibt die nivellitisch ermittelten Subsidenzraten an.

4.3 Methodische Arbeiten zur InSAR-Prozessierung

Im Rahmen der geodätischen Arbeiten im Projekt SUBI wurden mehrere Module zur multitemporalen Auswertung von SAR-Szenen programmiert und in die Prozessierungskette der Software StaMPS implementiert. Die Module können wahlweise verwendet werden, sind kombinierbar und ermöglichen damit eine optimierte Auswertestrategie für verschiedene Anwendungsfälle. Das generelle Ziel dieser Erweiterungen ist es, in nicht-urbanen Gebieten und/oder Gebieten mit großen räumlichen Bewegungsgradienten mehr für die Deformationsmessung geeignete Punkte zu finden, als dies mit dem klassischen Persistent-Scatterer-Ansatz (PS-InSAR) möglich ist.

Abbildung 95 zeigt, wie sich die verschiedenen Module in den Ablauf der Prozessierung eingliedern. Grüne Farben markieren den normalen Ablauf der PS-Prozessierung mit StaMPS, das blaue Modul wurde im Rahmen der Masterarbeit von Verena Simon implementiert; rote Farben zeigen die Erweiterungen durch die Projektarbeit von Markus Even. Die Vorbereitung der von der Europäischen Raumfahrtbehörde (ESA) bezogenen SLC-Daten (SLC steht für ein fokussiertes, komplexes Datenprodukt) erfolgt am GIK i.d.R. mit den Toolboxen Delft Object-oriented Radar Interferometric Software (DORIS) der TU Delft (Kampes et al., 2003) oder mit der Sentinel Application Platform (SNAP) der ESA. Die weiteren Schritte werden mit der Stanford Method for Persistent Scatterers (Hooper et al., 2007)) durchgeführt. Zu Beginn der Analyse werden zunächst PS-Kandidaten (PSC) auf der Basis einfacher Kriterien ausgewählt. Dabei handelt es sich um Objekte am Erdboden mit einer punktförmigen Rückstreucharakteristik, die über lange Zeiträume stabil bleibt.



Abbildung 95: Vereinfachtes Ablaufschema der MT-InSAR-Prozessierung mit den im Rahmen der Projektarbeit neu entwickelten und implementierten Module. Grün: normaler Ablauf mit der Analysesoftware StaMPS; blau: M-SBAS Modul (Masterarbeit V. Simon); rot: DS-Vorprozessierung und Erweiterungen durch den Projektmitarbeiter M. Even.

Als Neuerung kann optional die DS-Vorprozessierung durchgeführt werden. Dabei werden mit erweiterten statistischen Methoden Kandidaten für komplexere Streumechanismen, sogenannte Distributed Scatterer (DS), mit langzeitstabilen Rückstreueigenschaften ausgewählt. Daran schließt sich die eigentliche Stabilitätsanalyse der Signalphasen an, die wahlweise mit dem normalen StaMPS-Algorithmus oder mit dem neu in StaMPS integrierten "Multi-Small-Baseline-Subset (M-SBAS)-Algorithmus" (Schenk, 2014) durchgeführt werden kann. Das Ziel beider Algorithmen ist, die Teilmenge der PS- bzw. PS + DS-Kandidaten mit guter Signalqualität zu identifizieren. Nur diese werden in der zweiten Stufe weiterprozessiert, die dazu dient, mittels mehrerer Iterationen das gesuchte Deformationssignal von Fehlertermen (z.B. auf Grund von Variationen der atmosphärischen Laufzeit-Verzögerung) zu trennen. Zu Beginn dieser Stufe muss die 2π -Mehrdeutigkeit der Signalphase im Zuge der Phasenabwicklung beseitigt werden. Zur Reduzierung der dabei bekanntermaßen häufig auftretenden Fehler kann dieser Schritt als Neuerung optional durch ein Phasenmodell unterstützt werden.

4.3.1 M-SBAS

Es existieren verschiedenen publizierte Vorgehensweisen, um aus der Masse der Pixel eines Radarbildes diejenigen herauszufiltern, denen die o.g. Objekte mit langzeitstabilen Rückstreueigenschaften zugeordnet sind. Zur sauberen Trennung der verschiedenen Signalanteile wird ein Stapel von mindestens 30 Radarbildern benötigt. Nach dem Originalansatz von Ferretti et al. (2001) werden alle Interferogramme (Differenzen zwischen zwei zu unterschiedlichen Zeitpunkten aufgenommenen Radarbildern) bezüglich einem nach bestimmten Kriterien ausgewählten Masterbild gebildet. Dabei entstehen Bildkombinationen mit großem zeitlichen Abstand (zeitliche Basislinie) oder großem räumlichen Abstand (räumliche Basislinie) zwischen den Aufnahmepositionen der Satelliten, die zu einer Reduzierung der Signalqualität führen. In der sog. "Small-Baseline-Subsets (SBAS)"-Alternative (Berardino et al., 2002) werden stattdessen alle möglichen Bildkombinationen mit günstigen zeitlichen und räumlichen Basislinien verwendet. Die dabei entstehende Redundanz bedeutet einen erhöhten Prozessierungsaufwand, kann aber zu einem besseren Signal-Rausch-Verhältnis führen.

Beiden Ansätzen ist gemeinsam, dass vor der Stabilitätsanalyse alle deterministischen Signalanteile, darunter die zu diesem Zeitpunkt noch nicht bekannte Bodendeformation, abgetrennt werden müssen. In Ferretti et al. (2001) wird dazu ein vorläufiges, lineares Deformationsmodell eingeführt. In Gebieten mit nichtlinearen Deformationen oder starken räumlichen Gradienten des Verschiebungsfeldes kann dieser einfache Ansatz dazu führen, dass nichtmodellierte Bewegungsanteile als zeitliche Variationen der Rückstreueigenschaften missinterpretiert und dadurch Punkte, die an sich für Deformationsmessungen geeignet wären, aussortiert werden. StaMPS umgeht dieses Problem, indem Deformationssignale nicht über a-priori Modelle, sondern über räumliche und zeitliche Filter vor der Stabilitätsanalyse beseitigt werden.

Als Alternative dazu hat Andreas Schenk in seiner am GIK durchgeführten Promotion ein Verfahren (M-SBAS) entwickelt, zusätzlich zum linearen Modell tatsächliche Messwerte, die nichtlineares zeitliches Verhalten der Punktbewegungen beschreiben, in die Analyse einzubinden (Schenk, 2014). In seinem Originalansatz wurden Temperaturkurven verwendet, um die durch thermoelastische Deformation hervorgerufenen Bewegungen von PS-Punkten an Gebäuden zu prädizieren. Dazu wird zusätzlich zur zeitlichen und räumlichen Basislinie eine dritte Basislinie in den SBAS-Ansatz eingeführt, die das gewählte Bewegungsmodell beschreibt. Die Koeffizienten des Bewegungsmodells werden für jeden PS-Kandidaten über ein iteratives Verfahren aus der mehrdeutigen Phase geschätzt.

Aufgabe der Masterarbeit von Verena Simon war es, den M-SABS-Ansatz in den Ablauf von StaMPS zu integrieren. Dazu mussten unter anderem einige Schnittstellen zur Ein- und Ausgabe von Zwischenergebnissen programmiert werden. Statt einer Temperaturkurve wurde für die dritte Basislinie der Kavernendruck angesetzt, da Druckvariationen in einem poro-elastischen Material untrennbar mit Deformationen verbunden sind und vermutet wurde, dass sich Druckänderungen im Untergrund bis zur Oberfläche durchpausen könnten. Dafür wurde eine mittlere, nicht-skalierte Zeitreihe der Druckvariation (Druckspiel) in den von der Firma Uniper SE betriebenen Kavernen herangezogen. Das Phasenmodell für ein beliebiges Pixel im Interferogramm *n* setzt sich danach aus den folgenden Anteilen zusammen:

$$\phi_n = \mathcal{W}(C_h b_{\perp,n} h + C_v \tau_n v + C_\alpha \Delta P_n \alpha + \phi_{res,n}) \tag{1}$$

mit: $C_h b_{\perp,n} h$ =Höhenabhängigkeit, $C_v \tau_n v$ =lineare Bewegungskomponente, $C_\alpha \Delta P_n \alpha$ =nicht-lineare (druckabhängige) Komponente, $\phi_{res,n}$ =Rauschanteile (inkl. Atmosphäre). \mathcal{W} steht für den Wrapping-Operator, da es sich noch um die mehrdeutige Phase handelt.

Die Koeffizienten werden über die Maximierung der zeitlichen Kohärenz γ geschätzt:

$$\gamma(\nu, h, \alpha) = \frac{1}{N} \left| \sum_{n=1}^{N} e^{i\phi_n} e^{i(C_h b_{\perp,n} h + C_\nu \tau_n \nu + C_\alpha \Delta P_n \alpha)} \right|$$
(2)

Um als PS-Punkt zur Deformationsmessung herangezogen zu werden, muss die finale Kohärenz des Punktes einen wählbaren Schwellwert überschreiten. Weitere Qualitätsuntersuchungen können optional folgen. Abbildung 96 zeigt eine Gegenüberstellung der mit den verschiedenen Ansätzen gefundenen Punktdichten. Mit M-SBAS erhöht sich die Anzahl nutzbarer Messpunkte gegenüber dem originalen StaMPS-Ansatz um einen Faktor 3, allerdings hauptsächlich in Bereichen, wo sich schon vorher viele PS-Punkte etablierten. Erst mit der DS-Vorprozessierung (Abbildung 96c) werden auch im Westen des Kavernenfeldes ausreichend Messpunkte gefunden, sodass die Überdeckung des Untersuchungsgebietes homogener wird.



Abbildung 96: Vergleich der PS-Punktdichte nach den drei getesteten Ansätzen für den absteigenden Orbit. (a) Normaldurchlauf StaMPS; (b) M-SBAS; (c) gemeinsame Auswertung von PS und DS-Punkten. Isolinien zeigen die aus Nivellements bestimmten Subsidenzraten, die gut mit den InSAR-Ergebnissen übereinstimmen. Das untere Bild (Originalgrafik: TRE-Altamira) zeigt schematisch das Auftreten von PS-Punkten (hohe Intensität, punktförmige Rückstreucharakteristik) und DS-Punkten (Ensemble von Rückstreuern mit geringer Intensität). Über Vegetation (Wald,

Landwirtschaft) sind i. A. keine nutzbaren Rückstreuer zu finden. Beachte: in den folgenden Abbildungen wird eine andere Farbskala verwendet.

Deutlich zu erkennen ist eine starke Absenkungstendenz über dem Kavernenfeld von über 20 mm/Jahr, die durch die Wiederholungsnivellements bestätigt wird (siehe Abbildung 96). Da jede Radaraufnahme im bearbeiteten Datenstapel für einen Messzeitpunkt steht, kann für jeden einzelnen PS-Punkt in Abbildung 97 eine Zeitreihe der Bodenbewegung erstellt werden. Es zeigt sich, dass einige Punktcluster neben der linearen Absenkungstendenz eine deutliche Bewegungskomponente mit annähernd jährlicher Periodizität besitzen. Außerhalb des Speicherfeldes sind keine Oberflächenverschiebungen erkennbar.

Eine erste Analyse zeigte, dass die zyklische Reaktion der Oberfläche zeitverschoben zum Drucksignal in den Kavernen auftritt. Um dieses Problem zu lösen, wurde in der Masterarbeit eine feste zeitliche Verschiebung der Druckkurve von 60 Tagen vorgegeben. Die Analyse der M-SBAS Ergebnisse ergab bei einigen Punktzeitreihen auch Anzeichen für ein zyklisches Signal, das nicht mit dem Kavernendruck korreliert. Diese Zusammenhänge werden im Folgenden weiter ausgearbeitet. Die im Projekt zur Verfügung stehenden Personalmonate reichten nicht aus, um den M-SBAS-Ansatz vollständig auszutesten. Die im Folgenden vorgestellten Ergebnisse wurden mit dem DS-Ansatz erzielt, mit dem eine deutliche Erhöhung der Punktdichte erreicht wird.

4.3.2 DS-Vorprozessierung

Das Grundkonzept für die Vorverarbeitung von DS stammt aus einer Veröffentlichung von Ferretti et al. (2011a). Um das gegenüber Punktstreuern im Allgemeinen deutlich kleinere Signal-Rausch-Verhältnis flächiger Rückstreuer zu erhöhen, wird über mehrere benachbarte DS-Pixel gemittelt. Für jedes Pixel wird dazu eine statistisch homogene Nachbarschaft ermittelt, die Kovarianzmatrix geschätzt und das DS-Signal extrahiert. Seit der Einführung des als "SqueeSAR" bezeichneten Verfahrens ist eine Vielzahl von Ansätzen entwickelt worden, um diese Aufgaben zu erfüllen (z.B. Shamshiri et al., 2016; Pepe et al., 2015; Wang & Zhu, 2016; Samiel-Esfahany, 2016; Lin & Perissin, 2017; Verde et al., 2018; Ansari et al., 2018), für eine Übersicht siehe Even & Schulz (2018). Für die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wurden die folgenden Methoden angewandt: Für den Gruppierungsschritt wurde der Ansatz von Lin & Perissin (2017) verwendet. Er besteht aus einer Signaltransformation, der Entfernung von Ausreißern auf der Grundlage eines angepassten Boxplots und der Anwendung des Einstichproben-t-Tests (Signifikanzniveau von 0,99). Von jedem Pixel in der Nachbarschaft dürfen bis zu 8 Ausreißer entfernt werden (<10 % für die verwendeten Datenstapel von 86 bzw. 118 Szenen). Pixel mit mehr Ausreißern wurden verworfen. Die Kovarianz wurde als 3D-Version der Kovarianzmatrix der Stichprobe geschätzt. Die Quadratwurzeln ihrer Diagonalwerte sind ein Maß für die Amplituden des DS-Signals. Die Phasen des DS-Signals wurden mit der Phasen-Triangulations-Kohärenz-Maximierung geschätzt (Ferretti et al., 2011c), die für kleine Nachbarschaften zuverlässiger ist als der in Monti-Guarnieri & Tebaldini (2008) abgeleitete Maximum-Likelihood-Schätzer.



Abbildung 97: Beispielzeitreihen für die Punkte 1 – 6 in Abbildung 96b. Schwarze Kreise: gesamtes Bewegungssignal; rote Kreuze: zyklischer Signalanteil. Außerhalb des Kavernenfeldes (PS5 & PS6) sind weder eine langfristige Subsidenz noch periodische Bodenbewegungen zu erkennen.

Eine Besonderheit des für diese Arbeit verwendeten Ansatzes besteht darin, dass die Entscheidung zwischen der alternativen Verwendung des DS- oder PS-Signals in einem frühen Stadium vor dem Pixelauswahlschritt von StaMPS getroffen wird. Die Motivation für dieses Vorgehen ergibt sich aus dem Design des Pixelauswahlschrittes: es werden diejenigen Pixel beibehalten, die im Vergleich zu einer durch räumliche Filterung erhaltenen Hintergrundphase kleine Residuen aufweisen. Da die Zuverlässigkeit der Hintergrundphase von der Verfügbarkeit qualitativ hochwertiger Pixel abhängt, ist es plausibel, DS und PS von Anfang an zu kombinieren. Um die Entscheidung zwischen beiden Rückstreutypen zu treffen, wird daher ein neu entwickeltes Kriterium angewandt, das die Differenz zwischen der Amplitudendispersion $D = \sigma_A / \bar{A}$ (\bar{A} = mittlere Amplitude, σ_A =Standardabweichung) des DS-Signals und des PS-Signals nutzt (Even, 2019). Die verwendeten Merkmale sind die Amplitudenstreuung D_A^{PS} für das PS-Signal, Amplitudenstreuung D_A^{DS} für das DS-Signal, die Differenz $\Delta D_A := D_A^{PS} - D_A^{DS}$ von Amplitudenstreuungen, die Anzahl der Pixel # Ω der Nachbarschaft der DS, Kohärenz der Phasentriangulation γ_{pt} und die zeitliche Kohärenz γ^{sel} berechnet aus den Residuen in Bezug auf die Hintergrundphase. T_{*} bezeichnet Schwellenwerte für die verschiedenen Merkmale (für weitere Details siehe Even (2019). Für diese Studie waren die Einstellungen $T_{D_A^{PS}} = 0,45$, $T_{D_A^{DS}} = 0,45$, $T_{\Delta D_A} = 0$, $T_{\#\Omega} = 20$, $T_{\gamma_{nt}} = 0,45$ und $T_{\gamma^{sel}} = 0,8$ gewählt worden.

Als weitere Verbesserung wurde eine modellbasierte Unterstützung des kritischen Schritts der Phasenabwicklung (unwrapping), mit dem die 2π -Mehrdeutigkeiten der Phase beseitigt werden, eingeführt. Grundlage für das Modell ist die Beobachtung, dass die Verschiebung über dem Speicherfeld drei Hauptkomponenten hat: eine lineare Senkung aufgrund der langfristigen Konvergenz der Kavernen, ausgeprägte nichtlineare Bewegungen als Reaktion auf betriebliche Druckänderungen sowie saisonale Verschiebungen in Torfgebieten aufgrund des jahreszeitbedingten Grundwassereintrages. Für jedes Pixel werden aus den Daten die Koeffizienten einer Linearkombination dieser drei Komponenten geschätzt. Für die Druckantwort wurde dazu ein analytisches Modell der visko-elastischen Deformation des Untergrundes infolge der Druckvariation in den Kavernen verwendet. Für die saisonale Bewegungskomponente wurden zeitliche Modelle aus vorläufigen InSAR-Ergebnissen gewonnen. Abbildung 98 zeigt eine Gegenüberstellung der beiden nichtlinearen Signalanteile. Deutlich zu erkennen ist die ca. 3-monatige Zeitverschiebung der Reaktion der Erdoberfläche auf das Drucksignal in den Kavernen, während die saisonalen Verschiebungen zeitgleich mit den Grundwasserstandsänderungen auftreten. Der Modellansatz wurde auch für die Verbesserung der Atmosphärenschätzung und die Trennung von Nutzsignal und Störtermen verwendet.

4.4 Modellierung des Zeitverlaufs des druckabhängigen Signals durch einen viskoelastischen Ansatz für den Salzkörper

Die beobachtete Verzögerung zwischen Kavernendruck und den daraus resultierenden Oberflächenverschiebungen führen wir auf das visko-elastische Verhalten der Salzschicht zurück, in die die Kavernen eingebettet sind. Um dies zu berücksichtigen, verwendeten wir einen einfachen Kelvin-Voigt-Körper, der aus einer parallelen Anordnung eines elastischen Elements mit Elastizitätsmodul E und eines viskosen Elements mit der Viskosität η besteht. Die konstitutive Gleichung für diesen Körper (vgl. (13.29), S. 690 in Meyers & Chawla, (2009)), die die Beziehung zwischen der anliegenden Spannung σ und der Deformation (strain) ϵ herstellt, lautet

$$\sigma = E \cdot \varepsilon + \eta \cdot \dot{\varepsilon} \tag{3}$$

Durch Einsetzen der Druckdifferenz $p_{cavern}(t) - p_{cavern}(t_0)$ für die Spannung σ und unter der Annahme $\varepsilon(t_0) = 0$ wird die Gleichung durch die verzögerte Druckfunktion gelöst

$$E \cdot \varepsilon = p_{top}(t) = \int_{t_0}^t \dot{p}_{cavern}(s) \cdot \left(1 - e^{-\frac{E}{\eta}(t-s)}\right) ds$$
(4)

 p_{top} ist der Druck an der Salzoberkante, von wo aus er sich elastisch zur Oberfläche ausbreitet.

Für den Kavernendruck p_{cavern} standen uns außer der gemittelten, nicht skalierten Druckkurve des Betreibers Uniper SE keine Informationen zur Verfügung, da diese Daten zu den Betriebsgeheimnissen der Betreiber gehören. Um zumindest den Zeitverlauf des Druckes im gesamten Kavernenfeld besser approximieren zu können, verwenden wir Informationen aus dem AGSI (Aggregated Storage Gas Inventory) über Füllstände von Gaskavernen als Surrogat für den Druck. Auf der AGSI-Webseite stehen für zwei Unternehmen ausreichend weit zurückreichende Füllstandszeitreihen der Erdgas-Typen H und L zur Verfügung. Diese umfassen 59 der 76 gasgefüllten Kavernen.

Um eine Modellkurve zu erhalten, wurde angenommen

$$p_{cavern} = \alpha_{1,H} \cdot f_{1,H} + \alpha_{1,L} \cdot f_{1,L} + \alpha_{2,H} \cdot f_{2,H} + \alpha_{2,L} \cdot f_{2,L}, \tag{5}$$

mit Füllständen $f_{*,*}$ von Erdgasen der Typen H und L in den Kavernen der beiden Unternehmen, für die geeignete Daten zur Verfügung stehen. Die Koeffizienten $\alpha_{*,*}$ sind unbekannt.



Abbildung 98: Modelle für den zyklischen Signalanteil. Oben: Druckabhängigkeit. Die grüne Modellkurve wurde aus dem Zeitverlauf des Kavernendrucks über einen visko-elastischen Ansatz mit einer Retardationszeit von 84 Tagen berechnet. Unten: saisonaler (grundwasserinduzierter) Signalanteil. Die blaue Vergleichskurve zeigt den Pegelstand eines Brunnes im Westen des Kavernengebietes. Sternsymbole kennzeichnen den Median der Zeitreihen für Ensembles von PS/DS-Punkten, in denen das jeweilige Signal prominent auftritt

Die unbekannten Parameter wurden durch eine Inversion aus den beobachteten Daten bestimmt. Dazu wurden aus einem vorläufigen StaMPS-Ergebnis Zeitreihen von Punkten, die das vermutete druckinduzierte Phasensignal aufweisen, ausgewählt und gemittelt (Median). Nach Abzug des linearen Anteils wurde das visko-elastische Modell an die gemittelte Zeitreihe angepasst. Optimierung der Retardationszeit $\frac{\eta}{E}$ aus (4) und der Koeffizienten $\alpha_{*,*}$ führt zu einer Modellkurve $m_{pres}(t)$, die dem gemittelten Signal aus InSAR recht gut entspricht (Abbildung 98, oben). $m_{pres}(t)$ beschreibt die Reaktion der beobachteten Phasen in Bezug auf Variationen der Füllstände der Kavernen. Sie unterscheidet sich von $p_{top}(t)$ um einen Faktor, der zwischen Druck- und InSAR-Phasen skaliert. Dieser Faktor wird unter Verwendung der Physik, die im Mogi-Modell implementiert ist, geschätzt.

Aus der Optimierung wurde eine Retardationszeit von 84 Tage ermittelt. Setzt man für den Salzkörper denselben Elastizitätsmodul $E = 3 \cdot 10^{10} Pa$ wie für die darüber liegende elastische Gesteinsschicht an (siehe nachfolgenden Abschnitt), so ergibt sich eine Viskosität von $\hat{\eta} = 2,17 \cdot 10^{17} Pa \cdot s$. Beide Werte liegen in der Spannbreite plausibler Werte für einen Salzkörper (Liu et al., 2017). Abbildung 98 (oben) zeigt das InSAR-Signal, das angepasste zeitliche Modell und die Linearkombination der Zeitreihe der Füllstände unter Verwendung der durch Optimierung erhaltenen Koeffizienten. Aus der guten Übereinstimmung von Beobachtungen und Modell, sowie den abgeleiteten Parameterwerten schließen wir, dass der Ansatz die Zusammenhänge nicht perfekt, aber plausibel beschreibt.

Das Modell für saisonale Verschiebungen wurde ebenfalls mit Hilfe eines vorläufigen StaMPS-Ergebnisses erstellt. In diesem Fall wurden Punkte mit signifikanten saisonalen Phasenschwankungen ausgewählt. Ein lineares Phasenmodell, bestehend aus einem konstanten Offset, einem linearen Trend und dem Druckverlauf $m_{pres}(t)$, wurde an die Zeitreihe jedes dieser Punkte angepasst und subtrahiert. Von den residualen Zeitreihen wurde der räumliche Mittelwert (Median) berechnet. Durch eine robuste, lokal gewichtete quadratische Regression in einem gleitenden Zeitfenster über jeweils 15 Messzeitpunkte wurde die Modellkurve aus der Mediankurve abgeleitet. Um die ausgeprägte Form des Signals beizubehalten, wurde die Regression separat innerhalb ausgewählter Intervalle zwischen den Extrema durchgeführt. Abbildung 98 (unten) zeigt das gemittelte InSAR-Signal sowie das angepasste saisonale Modell. Der Vergleich mit einer gemessenen Grundwasserstandskurve zeigt eine gute Übereinstimmung. Dies gilt generell auch für weitere Grundwasserpegel im Messgebiet, wobei jedoch zu berücksichtigen ist, dass Brunnenpegelschwankungen oft nur für lokale Gebiete repräsentativ sind und selbst Brunnenpegel in unmittelbarer Nähe deutlich unterschiedliche Zeitverläufe aufweisen können.

4.5 Modellierung des Verschiebungsfeldes über dem Kavernenfeld durch Superposition der Beiträge der einzelnen Kavernen

Für die quantitative Modellierung des Verschiebungsfeldes an der Erdoberfläche wird das viskoelastische Modell mit einem analytischen Modell für die Ausbreitung von Druckstörungen durch Punktquellen in einem elastischen Halbraum kombiniert (Abbildung 99). Der Ansatz geht davon aus, dass jede Kaverne von einem kugelförmigen Salzmantel mit einer Dicke von 75 m umgeben ist. Der oberste Punkt der Salzkugel fällt mit der Oberkante der Salzschicht an der Position der Kaverne zusammen. Die Salzkugeln wirken als Druck- oder Volumenquellen in einem elastischen Halbraum, zu Ehren von Mogi (1958) oft als "Mogi"-Quellen bezeichnet. Der Druck an der Außenseite der Salzkugeln ist gegeben durch $p_{top}(t)$ und steht nach Gl. (1) und (2) mit der Druckschwankung im Inneren der Kavernen in Zusammenhang. Das Modell verwendet also einen elastischen Teil, der durch den Mogi-Ansatz beschrieben wird, und eine visko-elastische Komponente, die durch den Kelvin-Voigt-Körper beschrieben wird. Wir nehmen weiterhin an, dass das Oberflächendeformationsmuster aus der linearen Überlagerung der Beiträge jeder Kaverne resultiert. Der Einfachheit halber verwenden wir im Folgenden den Begriff "Kaverne", um die zusammengesetzte Druckquelle zu bezeichnen; das Gesamtmodell wird in diesem Bericht auch als "Multi-Mogi-Modell" bezeichnet. Der Mogi-Ansatz gilt streng genommen nur für Punktquellen; wir nehmen an, dass die Druckquellen weit genug von der Oberfläche entfernt sind, sodass der durch die reale Gestalt gegebene Fehler vernachlässigbar klein ist.

Der elastische Beitrag einer Kaverne mit den Lagekoordinaten (x_c, y_c) und der Tiefe d_c zu der am Punkt (x, y) auftretenden Oberflächenverschiebung ist proportional zu

$$M_{c}(x,y) = \frac{2(1-\nu^{2})a_{c}^{3}}{E} \begin{pmatrix} (x-x_{c})/R^{3} \\ (y-y_{c})/R^{3} \\ d_{c}/R^{3} \end{pmatrix},$$
(6)

E ist der Elastizitätsmodul des Halbraums, v die Poisson-Zahl,

$$R = \sqrt{(x - x_c)^2 + (y - y_c)^2 + {d_c}^2}$$
(7)

und $d_c = s_c - a_c$, wobei s_c den Abstand der Salzoberkante von der Oberfläche bezeichnet (mit negativem Vorzeichen). $a_c = 75m + r_c$ ist der Radius einer Salzkugel mit einer kugelförmigen Kaverne mit dem Radius r_c in seinem Zentrum. r_c ist der "virtuelle" Radius der Kaverne, berechnet aus dem Kavernenvolumen unter der Annahme, dass sie kugelförmig ist. In der Realität sind Kavernen unregelmäßig geformt und eher von zylindrischer oder ellipsoider Form. Die Annahme, dass sich der höchste Punkt der kugelförmigen Kaverne 75 m unter der Salzoberkante befindet, ist etwas willkürlich, da wir die genauen vertikalen Positionen der Kavernen in der Salzschicht nicht kennen. Informationen zu Positionen, Tiefe der Salzschicht und Volumina der Kavernen wurden von den Projektpartnern zur Verfügung gestellt. Für den elastischen Halbraum wurden ein Elastizitätsmodul $E = 3 \cdot 10^{10} Pa$ und eine Poisson-Zahl $\nu = 0,25$ angesetzt. Dies sind gängige Werte für mesozoische Gesteine; genaue Angaben dazu sind uns nicht bekannt.



Abbildung 99: (links): Skizze der Modellgeometrie (d_c = Tiefe des Kavernenmittelpunktes, s_c = Tiefe der Salzoberkante, a_c = Radius der Salzkugel, r_c = Radius der Kaverne). Der Salzschale wird eine visko-elastische Rheologie zugeordnet (Kelvin-Voigt-Körper, rechts); die Schicht zwischen Salzoberkante und Erdoberfläche verhält sich elastisch. E = Elastizitätsmodul, η = Viskosität, P_{cav} = Druck im Innern der Kaverne, P_{salt} = Druck an der Oberfläche der Salzkugel.

Wir verwenden das Modell, um zwei Komponenten des beobachteten Verschiebungsfeldes zu beschreiben: (1) die Parameter der linearen Komponente des Verschiebungsmodells, (2) die Parameter der Druckantwort. Im Falle der linearen Komponente wird angenommen, dass alle Kavernen mit der gleichen Rate konvergieren. Dies bedeutet, dass nur ein Parameter, p_{lin} , als unbekannt angenommen wird (p_{lin} beschreibt die Volumenänderung mit der Zeit t). Er muss so bestimmt werden, dass die Projektionen der Verschiebung in Schrägentfernung (LOS)

$$D_{lin}(x, y, t) = t \cdot p_{lin} \cdot \sum_{c \in C} M_c(x, y)$$
(8)

die lineare Modellkomponente für beide Überflugbahnen und alle durch die InSAR-Verarbeitung gefundenen Punkte optimal approximieren (*C* bezeichnet die Gesamtheit aller Kavernen). Der Zusammenhang zwischen Druck und Volumen wird nach dem Mogi-Formalismus (1958) beschrieben als:

$$p_{lin} = \frac{V_{lin} \cdot E}{a_c^3 \cdot \pi \cdot 2(1+\nu)} \tag{9}$$

Das Modell wurde anhand der gemessenen Wiederholungsnivellements validiert. Es zeigt sich, dass die nivellitisch ermittelte Absenkung über dem Kavernenfeld bis auf wenige Millimeter erklärt werden kann (Abbildung 100). Die Optimierung ergibt jährliche volumetrische Konvergenzraten in einer realistischen Größenordnung von 1 %. Wir schließen daraus, dass der Modellansatz die lineare Bewegungskomponente an der Oberfläche plausibel beschreibt.

Im Falle der Druckreaktion wird angenommen, dass nur die Gas enthaltenden Kavernen einen Beitrag leisten, und die Verdrängung proportional zum Druck auf der Oberfläche der Salzkugel ist, der sich aus dem Kavernendruck gemäß Formel (4) ergibt. Es wird davon ausgegangen, dass der Druck in all diesen Kavernen zu jeder Zeit gleich ist. Die Verschiebung am Punkt (x, y) zur Zeit t ergibt sich durch den Multi-Mogi-Ansatz:

$$D_{pres}(x, y, t) = p_{top}(t) \cdot \sum_{c \in C(pres)} M_c(x, y) = m_{pres}(t) \cdot p_{pres} \cdot \sum_{c \in C(pres)} M_c(x, y)$$
(10)

Wie oben beschreibt m_{pres} den Druck an der Oberfläche der Salzkugeln; C(pres) bezeichnet die Gesamtheit aller gasgefüllten Kavernen. Der Parameter p_{pres} wird so festgelegt, dass die Projektionen auf LOS von D_{pres} die Komponente der Druckantwort für beide Bahnen und alle durch die InSAR-Verarbeitung gefundenen Punkte optimal approximieren.

Über den Parameter p_{pres} kann die maximale Druckdifferenz ΔP_{max} in den Kavernen, bezogen auf den Druck P_0 , der dem Füllstand Null entspricht, berechnet werden (die Kavernen werden immer oberhalb eines (uns nicht bekannten) Kissendrucks betrieben). Zu diesem Zweck berechnen wir die Druckdifferenz

$$\Delta p_{top} = p_{top}(t_{max}) - p_{top}(t_{min}) = p_{pres} \cdot \left(m_{pres}(t_{max}) - m_{pres}(t_{min}) \right)$$
(11)

die der Differenz zwischen Maximum und Minimum des Verschiebungssignales an der Oberfläche entspricht. Geht man davon aus, dass der Kavernendruck ausgedrückt werden kann als

$$p_{cavern} = \Delta P_{max} \cdot f_{cavern} + P_0 = \Delta P_{max} \cdot \frac{\hat{\alpha}_{1,H} \cdot f_{1,H} + \hat{\alpha}_{1,L} \cdot f_{1,L} + \hat{\alpha}_{2,H} \cdot f_{2,H} + \hat{\alpha}_{2,L} \cdot f_{2,L}}{\hat{\alpha}_{1,H} + \hat{\alpha}_{1,L} + \hat{\alpha}_{2,H} + \hat{\alpha}_{2,L}} + P_0 \quad (12)$$

wobei f_{cavern} der gewichtete Mittelwert der Füllstände ist, dann kann die linke Seite von Formel (11) durch Auswertung von Formel (4) für t_{max} und t_{min} berechnet werden:

$$\Delta p_{top} = \Delta P_{max} \cdot \left(\int_{t_0}^{t_{max}} \dot{f}_{cavern}\left(s\right) \cdot \left(1 - e^{-\frac{E}{\eta}(t-s)}\right) ds - \int_{t_0}^{t_{min}} \dot{f}_{cavern}\left(s\right) \\ \cdot \left(1 - e^{-\frac{E}{\eta}(t-s)}\right) ds \right)$$
(13)

Aus (11) und (13) kann ΔP_{max} berechnet werden. Es ergibt sich der Wert $\Delta P_{max} = 5,3 \cdot 10^6 Pa$, der vermutlich am unteren Ende der realen Druckwerte liegt. Dennoch landen wir bei einer angemessenen Größenordnung, was darauf hindeutet, dass unser einfacher analytischer Modellansatz physikalisch plausibel ist.



Abbildung 100: Residuum des Deformationsfeldes nach Subtraktion des Multi-Mogi-Modells von den gemessenen Nivellements. Durch Annahme plausibler Konvergenzraten zwischen 0,8 % und 1 % für die gasgefüllten Kavernen sowie 0,1 % für die flüssigkeitsgefüllten Kavernen kann die beobachtete Subsidenz bis auf wenige mm erklärt werden.

4.6 Ergebnisse

Die im Folgenden vorgestellten Ergebnisse wurden mit der DS-Vorverarbeitung und dem erweiterten StaMPS-Algorithmus, angewendet auf die Datensätze aus beiden Überflugrichtungen, erarbeitet. Für jeden Rückstreuer wurde ein vierdimensionales Phasenmodell an die Zeitreihe angepasst, bestehend aus: (1) additiver Konstante, (2) linearem Trend, (3) druckabhängigem Anteil, (4) hydrologischem Anteil. Abbildung 98 (Seite 135) macht deutlich, dass der Zeitverlauf der beiden zyklischen Signalanteile trotz der Grundperiode von einem Jahr unterschiedlich ist und sich deshalb diskriminieren lässt. Dies ist die Aufgabe eines Optimierungsalgorithmus, der für jede einzelne Deformationszeitreihe die vier Modellparameter individuell bestimmt.

Abbildung 101 b und Abbildung 102 a+b zeigen das räumliche Muster der erhaltenen Modellparameter beispielhaft für den absteigenden Orbit. Der Farbcode für den linearen Trend drückt mm/Jahr aus. Für

die beiden zyklischen Parameter wird die maximale Verschiebung in mm dargestellt, d.h. der Betrag der Differenz zwischen Maximum und Minimum des Signals. Über das gesamte Kavernenfeld können signifikante lineare Trends beobachtet werden bis ca. -21 mm/Jahr im Maximum (Abbildung 101b). Offensichtlich erfahren alle Kavernen eine Konvergenz und tragen zum Signal bei. Die Volumenabnahme von Salzkavernen ist bereits aus früheren Arbeiten bekannt (Warren, 2006). Aufgrund des Kriechverhaltens von Salz schrumpft die Kaverne, da der Innendruck kleiner ist als die lithostatische Auflast. Die Konvergenzraten hängen vom Betrieb des Speichers ab. In Epe kann die beobachtete Subsidenz mit Konvergenzraten zwischen 0,8 % und 1 % für die gasgefüllten und 0,1 % für die flüssigkeitsgefüllten Kavernen erklärt werden. Zur besseren Orientierung zeigt Abbildung 101a die Lage der 114 Kavernen, die zur Speicherung von Erdgas, Helium, Sole und Benzin dienen. Die Positionen der Nivellementpunkte und Grundwasserpegel sind ebenfalls in Abbildung 101a dargestellt. Die Nivellements sind entsprechend der aus diesen Messungen geschätzten linearen Verschiebungsraten eingefärbt. Die Absenkungsraten entsprechend denjenigen aus der InSAR-Analyse, wobei ein direkter Vergleich an dieser Stelle nicht möglich ist, da die InSAR-Ergebnisse noch in Schrägsicht dargestellt sind und deshalb den Einfluss horizontaler Verschiebungen enthalten können.



Abbildung 101: (a, links): Überblick über das Kavernenfeld Epe. Weiße Symbole kennzeichnen Gaskavernen, schwarze Symbole fluidgefüllte Kavernen. Blaue Punkte kennzeichnen die Lage der Brunnenpegel, die für diese Studie verwendet wurden. Eingefärbte Kreise geben die Lage der Nivellementspunkte und die mittlere (lineare) Absenkung an. (b, rechts): Lage und lineare Verschiebungsraten in Schrägentfernung (LoS) der DS und PS-Punkte (Ausschnitt) für die absteigende Überflugbahn des SAR Satelliten Sentinel.

Oberflächenbewegungen, die durch den Druckverlauf modelliert werden, treten erwartungsgemäß über dem östlichen Teil des Kavernenfeldes auf, wo im Wesentlichen Gas gespeichert wird (Abbildung 102). Die grundwasserabhängigen Bewegungen beschränken sich auf ein Moor im westlichen Teil des Kavernenfeldes (Abbildung 102). Wie im Folgenden gezeigt wird, enthalten aber auch diese Punkte verwertbare Information über den Deformationsprozess der Gaskavernen.

Da in der SAR-Interferometrie der Abstand zwischen Bodenpunkt und Radarantenne in Schrägsicht mit einem Winkel von ca. 30⁰ gemessen wird, tragen sowohl Vertikal- als auch Horizontalverschiebungen am Erdboden zum beobachteten Deformationssignal bei. Eine Trennung in Vertikal- und Ostwest-Verschiebung ist möglich über eine Kombination von InSAR-Beobachtungen aus auf- und absteigenden Überflugbahnen. Da die Flugbahnen polnah sind, schaut der Satellit während des Überfluges entweder von Westen oder von Osten aus auf das Messgebiet. Die Aufnahmegeometrie der SAR-Satelliten ist unempfindlich gegenüber Bodenbewegungen in Nord-Süd-Richtung, sodass diese im Kombinationsansatz vernachlässigt werden können. Die Kombination kann entweder rein geometrisch oder durch Anpassung des 4-dimensionalen Deformationsmodells vorgenommen werden. In jedem Fall müssen die beiden Ergebnisstränge von StaMPS zum Zweck der Bahnkombination auf gemeinsame Positionen interpoliert werden, da DS und PS verstreut liegen und für auf- und absteigende Überflugbahnen nicht zusammenfallen. Ebenso stimmen die Zeitpunkte der Erfassung nicht überein, was eine zeitliche Interpolation notwendig macht. Verschiedene Kriging-Ansätze zur Interpolation wurden dazu getestet und implementiert. Die letztendlich gewählte Gittergröße beträgt 100 m. Eine ausführliche Diskussion der Verfahren und Vorgehensweisen findet sich in der projektbegleitenden Publikation Even et al. (2020).



Abbildung 102: (a, links): der druckabhängige Signalanteil. Dargestellt ist die maximale Doppelamplitude des zyklischen Signals. Die Druckabhängigkeit konzentriert sich auf das Gebiet oberhalb der gasgefüllten Kavernen (vergl. Abbildung 101a). (b, rechts): der grundwasser-induzierte (saisonale) Signalanteil. Dieses periodische Signal tritt im Bereich von zwei Mooren auf und steht nicht im Zusammenhang mit dem Kavernenbetrieb.

Abbildung 103a zeigt einen direkten Vergleich der linearen vertikalen Verschiebungsraten, die über die Bahnkombination aus den SAR-Daten und aus den Nivellements der Jahre 2015 - 2017 abgeleitet wurden. Beide Datensätze stimmen sehr gut überein. Für eine quantitative Bestimmung der Abweichungen wurden die InSAR-Ergebnisse an die Nivellementspunkte interpoliert und die Differenzen für jedes Jahr bestimmt, wobei der 15. Juni als zeitlicher Schwerpunkt der Nivellement-Kampagnen angenommen wurde. Die Standardabweichung der jährlichen Differenzen liegt in weiten Teilen des Gasfeldes bei 1 mm – 3 mm (Abbildung 103b). Lediglich entlang eines nord-südlich verlaufenden Straßenzuges erreicht sie Werte von bis zu 8 mm. Die Gründe dafür sind momentan nicht bekannt; es fällt jedoch auf, dass die Gebiete mit größeren Abweichungen in der Nähe der Grenze zwischen Gas- und Fluidgefüllten Kavernen auftreten (vergl. Abbildung 102a).



Abbildung 103: (a, links): Vertikalkomponente des linearen Signalanteils nach der Kombination der auf- und absteigenden Überflugbahnen im Vergleich zum Nivellement. Die kreuzförmigen Symbole markieren die Nivellementpunkte, Punkte die InSAR-Ergebnisse. (b, rechts): Standardabweichung der Differenzen der InSAR- und Nivellementsergebnisse der Jahre 2015 – 2017. Die Standardabweichungen liegen mit wenigen Ausnahmen zwischen 1 mm – 3 mm.



Abbildung 104: linearer Signalanteil nach der Kombination der auf- und absteigenden Überflugbahnen. (a, links): Vertikalkomponente. (b, rechts): Horizontalkomponente. Deutlich zu erkennen ist, dass die "Moorpunkte" im westlichen Teil des Speicherfeldes das durch die Konvergenz der Kavernen hervorgerufene Signal sinnvoll wiedergeben und damit für eine Deformationsmessung geeignet sind.

Da sich die Kavernen in einer Tiefe von ca. 1100 m befinden, treten neben den Bodenbewegungen in vertikaler Richtung auch erhebliche Horizontalbewegungen mit Raten von +/- 10 mm/Jahr auf (Abbildung 104b). Dies ist eine zusätzliche Information, die nur aus den InSAR-Ergebnissen, nicht aber aus den Nivellements gewonnen werden kann. Horizontalverschiebungen und -gradienten sind potentiell für Schäden an Gebäuden und Infrastruktur von großer Bedeutung.



Abbildung 105: druckabhängiger Signalanteil nach der Kombination der auf- und absteigenden Überflugbahnen. (a, links): Vertikalkomponente. (b, rechts): Horizontalkomponente.

Für das zyklische, aus großer Tiefe stammende druckinduzierte Signal werden erhebliche Horizontalkomponenten deutlich (Abbildung 105). Es ist zu beachten, dass der lineare Trend durch Konvergenz aller Kavernen verursacht wird, wobei Konvergenzraten einzelner Kavernen von der jeweiligen Betriebsweise abhängen. Zum druckabhängigen zyklischen Signal hingegen tragen nur gasgefüllte Kavernen bei. In beiden Fällen wird deutlich, dass über dem Moor gelegene DS-Punkte Oberflächenbewegungen, die sich auf den Betrieb des Kavernenfeldes zurückführen lassen, sinnvoll wiedergeben und eine vollständigere Rekonstruktion des Deformationsfeldes an der Erdoberfläche ermöglichen.



Abbildung 106: grundwasserinduzierter (saisonaler) Signalanteil nach der Kombination der auf- und absteigenden Überflugbahnen. (a, links): Vertikalkomponente. (b, rechts): Horizontalkomponente. Im Gegensatz zum linearen und druckabhängigen Signalanteil treten im Wesentlichen nur Vertikalbewegungen auf.

Abbildung 106 zeigt schließlich das jahreszeitliche Signal mit starken vertikalen Bewegungen über den Mooren im westlichen Teil des Kavernenfeldes. Im Gegensatz zu den anderen Signalkomponenten wird kein großräumiges Horizontalfeld erkennbar, was ein weiteres Indiz für die geringe Tiefe des grundwasserinduzierten Deformationsprozesses ist. Das hydrologische Signal ist den betriebsbedingten Signalen überlagert, kann aber aufgrund seines unterschiedlichen Zeitverhaltens durch den hier verwendeten Inversionsansatz eindeutig unterschieden werden.

Zusammenfassung Bewertung, Verwertung: Beurteilung des Informationsgewinns und Fazit

Die Ergebnisse zeigen, dass mit Hilfe von multitemporalen InSAR-Techniken unter Verwendung von Sentinel-1-Daten wertvolle Informationen über ein komplexes Oberflächenverschiebungsfeld wie im Falle des Kavernenspeicherfeldes Epe gewonnen werden können. Die aus der Bahnkombination abgeleiteten linearen Absenkungsraten von bis zu –22 mm/Jahr im Zentrum des Kavernenfeldes stimmen bis auf wenige mm mit den Ergebnissen aus jährlichen Wiederholungsnivellements überein. Die InSAR-Ergebnisse ergänzen die linienhaften Nivellements mit zusätzlichen Informationen aus der Fläche und liefern horizontale Bewegungsraten in Ost-WestRichtung, die in Epe ca. +/- 10 mm/Jahr im Maximum betragen. Insbesondere ist eine hohe zeitliche Abtastung von 6 Tagen möglich, die mit klassischen geodätischen Verfahren wie Nivellements nur schwer zu erreichen ist. Die erfolgreiche Analyse wurde durch die Erweiterung von StaMPS durch DS-Vorverarbeitung und Einführung eines Deformationsmodells ermöglicht, das die Phasenabwicklung und Atmosphärenschätzung verbesserte und die Aufspaltung und räumliche Zuordnung der verschiedenen Signalkomponenten erlaubte. Die DS-Vorverarbeitung ermöglicht die Extraktion von Informationen auch in Gebieten, in denen keine PS verfügbar sind, insbesondere über den Mooren im westlichen Teil des Kavernenfeldes. Auf diese Weise lässt sich eine vollständigere Beschreibung des Bewegungsfeldes an der Erdoberfläche erreichen.

Das verwendete Deformationsmodell hilft neben seinen Vorteilen für die Datenverarbeitung auch bei der Interpretation der Beobachtungen, indem es das Verschiebungssignal in physikalisch fundierte Bestandteile zerlegt. Erstmalig konnten unterjährige, zyklische Bodenbewegungen mit einer Doppelamplitude von bis zu 15 mm in der Vertikal- und 8 mm in der Horizontalkomponente über einem Kavernenfeld belegt werden, für die ein Zusammenhang mit Druckschwankungen im Untergrund vermutet wird. Obwohl kein direkter Zugang zu Absolutdruckdaten von jeder Kaverne gegeben war, legen die hohen Korrelationen der InSAR-Zeitreihen mit den Füllständen von AGSI+ als Drucksurrogat, das sich durch eine visko-elastische Formation ausbreitet, nahe, dass der vorgeschlagene Kausalzusammenhang besteht und betriebliche Druckänderungen in den Kavernen mit zeitlich verzögerten Oberflächenverschiebungen einhergehen. Der vorgestellte modellgetriebene Ansatz ermöglicht eine klare Trennung der druckbedingten Verschiebungen von grundwasserinduzierten Oberflächenbewegungen, die in abgegrenzten Moorgebieten auftreten. Damit konnten die in der Aufgabenstellung genannten Ziele erreicht werden.

Probleme der InSAR-Methode liegen in einer möglichen Beeinflussung der statistischen Ansätze durch räumlich korreliertes Rauschen und einer Unterschätzung der Signalamplituden durch die verschiedenen Filter- und Interpolationsschritte. Das verwendete Deformationsmodell gibt die geophysikalische Situation nur stark vereinfacht wieder. Insbesondere geht das Modell davon aus, dass die Kavernen jeweils von einem kugelschalenförmigen Salzmantel umgeben sind, während sie sich tatsächlich in einer annähernd horizontalen Salzschicht befinden. Zukünftige Untersuchungen könnten helfen, diese Mängel zu beheben. Bessere Filteralgorithmen könnten eine Verdrängung von Signalenergie in das Residuum vermeiden und dadurch die Unterschätzung der Signalamplituden (bzw. einen Anstieg des Rauschpegels, der mit der Schätzung des verdrängten Signalanteils verbunden ist) verhindern. Eine bessere Modellierung der geophysikalischen Realitäten kann zu einer verbesserten Schätzung der vertikalen und horizontalen Verschiebungskomponenten beitragen. Schließlich könnte eine Wiederholung der Studie mit Daten aus einem längeren Zeitraum dazu dienen, den hier vorgestellten Ansatz zu validieren.
4.6.1 Schlussfolgerung und Empfehlung

Zur Interpretation der MT-InSAR-Beobachtungen wurde im Rahmen des Projektes ein zeitliches Modell für das druckbedingte Verschiebungsfeld an der Erdoberfläche (Druckantwort) abgeleitet, das den Kavernendruck mit der beobachteten Verschiebung in Beziehung setzt und auf der Theorie für viskoelastisches Verhalten eines Kelvin-Voigt-Körpers basiert. Zur Theorie eines Kelvin-Voigt-Körpers siehe Meyers & Chawla (2009).

Nach den im Projekt erzielten Ergebnissen halten wir die multi-temporale SAR-Interferometrie grundsätzlich für das Monitoring von Kavernenspeichern geeignet. Dabei ist insbesondere die im Vergleich zu anderen Messverfahren hohe räumliche und/oder zeitliche Auflösung bei einer guten Messgenauigkeit zu nennen. Wir konnten zeigen, dass ein plausibler funktionaler Zusammenhang zwischen dem Verschiebungsfeld an der Erdoberfläche, der langfristigen Konvergenz und betrieblichen Druckvariationen in den Kavernen existiert. Bei Verwendung absoluter Druckdaten und einer weiteren Verbesserung des funktionalen und stochastischen Modells scheint es mögliche, relevante Betriebsparameter, zu denen auch die rheologischen Eigenschaften des Speichergesteins gezählt werden müssen, zu überwachen und daraus sinnvolle Informationen für den Betrieb der Kavernenanlage zu extrahieren. Einschränkend ist zu sagen, dass bei einem großen Kavernenfeld, an dem mehrere Betreiber mit unterschiedlichen Betriebskonzepten beteiligt sind, das Verhalten einzelner Kavernen auf der Basis von Messungen an der Oberfläche nur schwer aufzulösen sein wird.

Wir empfehlen den gemeinsamen Einsatz der SAR-Interferometrie mit den bisherigen im jährlichen Turnus durchgeführten Nivellements, um die hohe Genauigkeit (ground truth) der terrestrischen Messungen mit der hohen zeitlichen und räumlichen Auflösung des satellitengestützten Verfahrens zu kombinieren. Die Hinzunahme von GNSS-Messungen, beispielsweise durch Installation kostengünstiger Mehrfrequenz-Empfänger an jeder Pump- und Speicherstation, würde die Bestimmung der Nordkomponente und damit die Ableitung des dreidimensionalen Verschiebungsfeldes oberhalb der Kavernen ermöglichen. Es erscheint möglich, die Datenprozessierung weitgehend zu automatisieren; spezialisierte Firmen und Vermessungsbüros stehen für die routinemäßige Durchführung dieser Aufgaben bereit. Da das Sentinel-Programm auf Nachhaltigkeit ausgelegt ist und die Radarszenen kostenfrei abgegeben werden, könnte auf diese Weise ein kostengünstiges und aussagkräftiges Monitoringsystem umgesetzt werden. Es steht zu erwarten, dass ein solches System, wenn es transparent eingesetzt wird, die öffentliche Akzeptanz der für die Energieversorgung notwendigen Speicheranlagen positiv beeinflusst.

5 Zusammenfassung

Ziel des Projekts SUBI war die qualitative und quantitative Untersuchung der komplexen geomechanischen Vorgänge, die den sicheren Betrieb von Untertage-Gasspeichern beeinflussen. Dabei lag der Fokus auf dem Einfluss zyklischer Beanspruchungen von technischen Installationen und Gasspeichern im regionalen Spannungsfeld. Dazu wurde ein holistischer, skalenübergreifender Ansatz gewählt, um inter und intradisziplinät Lösungsansätze zu entwickeln.

Anhand der Ergebnisse wurden Empfehlungen entwickelt, die helfen einen sicheren Betrieb auch in Zukunft bei veränderten Randbedingungen aufrechtzuerhalten.

In den folgenden Ausführungen sind die Haupt-Ergebnisse des Vorhabens für die verschiedenen Themenbereiche zusammenfassend beschrieben:

Poren-Reservoir und Deckgebirge – Veränderungen im Speicherbetrieb

Laborexperimente an Porenreservoirgestein und Deckgebirge und ihre Interpretation hinsichtlich der Speicherdichtigkeit.

- zyklische Be- und Entlastung der Gesteine wurden bei verschiedenen Spannungszuständen bis zur Belastungsgrenze durchgeführt. Dabei konnte die Mohr-Coulomb-Bedingung als Grenzzustand der Festigkeit auch für Gesteine bestätigt werden, wenn diese als fraktale Strukturen betrachtet werden.
- Durch die Berücksichtigung kritischer Phänomene konnte eine andere, von den klassischen Materialwissenschaften abweichende Betrachtung des mechanischen Verhaltens von Fels etabliert und dessen Verhalten auf lange Sicht physikalisch voraussichtlich besser erklärt werden.
- Labortests deuten darauf hin, dass die Anfangsporoelastizität über die gesamte Testsequenz bestehen blieb und die untersuchten Sandstein- und Mergelproben nicht von Materialermüdung betroffen sind. Im Fall des Reservoirsandsteins zeigte sich, dass verlässliche Ergebnisse nur an konsolidierten und equilibrierten Proben nach Durchlaufen von wenigstens zwei Entleerungs-/Wiederbefüllungspfaden ermittelt werden können. Daher wird empfohlen, zur besseren Bestimmung dieses poroelastischen Parameters mehrere Entleerungs-/Wiederbefüllungspfade durchzuführen.
- Zudem verringerte sich die Permeabilität der untersuchten Deckgebirgsproben und damit erhöhte sich die Barrierewirkung des Deckgebirges mit der Zeit (mit der Anszahl der Befüllungszyklen). Zusammen mit dem generell als sehr hoch anzunehmenden Sperrdruck von ± 20 MPa deutet dies auf ein großes Rückhaltevermögen des untersuchten Porenspeichersystems auch bei hochzyklischer Belastung hin.

Mikrobiologische Prozesse und ihr Beitrag zu Korrosion, Scaling und Materialintegrität für den Betrieb geologischer Porenspeicher.

Die in SUBI durchgeführten Untersuchungen hatten zum Ziel, die Auswirkungen der unterirdischen Methaninjektion und Speicherung auf die natürliche mikrobielle Lebensgemeinschaft und die Geochemie der Wässer darzulegen.

- Im Rahmen des vorliegenden Berichtes wurden Ergebnisse aus *in situ* ähnlichen Untersuchungen zur mikrobiellen Aktivität und dem Einfluss der Mikroorganismen auf die Materialintegrität der Bohrungen für den Standort Bierwang präsentiert).
- Langzeitversuche im Labormaßstab zeigen, die Bildung von CH₄ unter Verbrauch von CO₂ und H₂ durch methanogene Archaea. Die beobachtete Aktivität weist auf eine aktive Biozönose im

Lagerstättenwasser vom Standtort Bierwang hin, die zur Methanisierung von H₂ und CO₂ fähig ist.

- Für den Pilotstandort zur CO₂-Speicherung in Ketzin wurden Tiefenproben im Hinblick auf die Veränderungen der mikrobiellen Biozönose in den Bohrungen über einen Zeitraum von fünf Jahren untersucht. Die Zusammensetzung der mikrobiellen Gemeinschaft wurde mittels Mikrobiomanalyse charakterisiert. Infolge der Abnahme organischer Substanzen nahm die Häufigkeit der Fermentierer ab und die der SRB zu. Die SRB-Konsortien wurden insbesondere von *Desulfallas* spp. dominiert.
- Die Änderungen in der Zusammensetzung der Bacteria und der Archaea weist darauf hin, dass auch nach fünf Jahren Exposition mit überkritischem CO₂ in den Bohrfluiden eine stoffwechselaktive Biozönose aus SRB und Methanogenen vorhanden war, die offensichtlich immer noch erheblich durch den Eintrag von organischen Verbindungen im Zuge des Bohrprozesses beeinflusst war.
- Die Langzeitversuche mit Proben vom Standort Neubrandenburg zeigen, dass die mikrobielle Aktivität und damit verbunden die Korrosion stark von der Temperatur abhängig ist. Bei steigender Temperatur sanken Korrosionsraten und bakterielle Abundanzen.

Numerische Simulationen im Reservoirmaßstab untersuchen, ob Untertage-Gasspeicher über Powerto-Gas als Kurzeitspeicher für Strom aus regenerativen Quellen genutzt werden können. Hierbei wurden unregelmäßige Lastwechsel zwischen Injektion und Produktion betrachtet.

- Es wurde ein allgemein anwendbarer Workflow entwickelt, der im Reservoirmaßstab eine thermohydraulische Modellierung von Mehrphasenströmung in porösen Medien mit einer mechanischen Simulation zur Berechnung von Spannungen und Deformation koppelt.
- Generell liefert der gekoppelte Modellierungsansatz den vollständigen Spannungstensor sowie das Porendruckfeld für den gesamten Modellraum und für beliebige Betrachtungszeiträume (historisch, rezent und für zukünftige Injektions- und Produktionsszenarien). Diese Informationen können zur Projektierung weiterer Bohrungen (wg. Bohrlochstabilität insbesondere für Horizontalbohrungen relevant), zur Optimierung des Speicherbetriebs und insbesondere auch zur Festlegung des maximalen sicheren Speicherdrucks und damit der Gesamtkapazität des Speichers verwendet werden.
- Eine Erweiterung des Kalibrierungskonzeptes reduzierte die Modellunsicherheiten signifikant.
- Der Workflow wurde erfolgreich auf ein ehemaliges Erdgasfeld östlich von München angewandt und die hypothetische Konversion in einen Kurzzeit-UGS untersucht. Dabei wurden sowohl regelmäßige als auch zeitlich variable Ein- und Ausspeisezyklen untersucht. Im konkreten Fall ergeben sich Limitierungen durch maximale und minimale Lagerstättendrücke und aufgrund der Menge des mitproduzierten Wassers, so dass auch Szenarien mit zusätzlichen, z.T. horizontalen Bohrungen bearbeitet und die maximale Speicherkapazität abgeschätzt wurden.

Dichtigkeit der Speicherinfrastruktur unter zyklischer Belastung - Technikumsexperimente und Modellierung

Der Einfluss von extremen zyklischen Belastungen auf die Dichtigkeit der UGS-Infrastruktur (Bohrungen) stand im Fokus der Arbeiten. Es wurde untersucht, ob die zyklischen Änderungen mit höherer Frequenz zu sicherheitsrelevanten Dichtigkeitsverlusten (Permeabilitätsveränderungen) im Verbund Gebirge-Zement-Verrohrung führen.

Technikumsexperimente:

- Empfehlung: Sandstrahlen von Rohrtouren vor einer Zementation führen zu einer signifikanten Verbesserung der Dichtigkeit des Zement-Verrohrungsinterfaces. Es wird empfohlen dies bei zukünftigem Einbau von Verrohrungen zu berücksichtigen, um damit zur Dichtigkeit und Sicherheit sowohl zukünftiger Speicher als auch beim Bohrlochverschluss bestehender Speicher beizutragen.
- Zyklische Belastungen führen vor allem am Beginn zu einer deutlichen Erhöhung der Gasmigration. Trotz der Vergrößerung des Ringspaltes sind die beobachteten Permeabilitäten bzw. Pseudopermeabilitäten (Ringspalt) meist so gering, dass eine massive Gasmigration durch eine auf mehr als 150 m Länge zementierte Strecken durch den Ringspalt für die meisten Anwendungen kein erhöhtes Sicherheitsrisiko darstellen werden.
- Die Entwicklungen im SUBI Projekt führten dazu, dass z.B. ein Autoklavensystem im Technikumsmaßstab (Typ II) entwickelt wurde, mit dem realistische Spannungs- und Porendruckverhältnisse im Untergrund abgebildet und für Großproben genutzt werden können. Axial kann ein Druck bis zu 120 bar aufgebaut werden. Als horizontale (confining) Drücke können bis zu 80 bar wirken und Porendrücke bis zu 70 bar können genutzt werden. Damit steht eine Experimentiermöglichkeit zur Verfügung, welche *in-situ* Untersuchungen in einem realitätsnahen Maßstab ermöglichen.
- Durch eine geeignete Oberflächenbehandlung der Casings (z.B. Sandstrahlen) kann die Dichtigkeit des Stahl-Zement Verbundes deutlich verbessert werden.

THC Modellierung zur Dichtigkeit der Bohrlochzementation: Die Modellierung der (auch chemischen) Prozesse, die bei zyklischen Druckwechseln und thermischer Belastung durch die Injektion und Entnahme von Fluiden auftreten, zielt auf die Vorhersage des Langzeitverhaltens ab.

- Verglichen wurden verschiedene Ansätze für den Volumenstrom:
 - Modell 1: durch den Zementkern mittels Darcy,
 - Modell 2: durch Ringspalt über Hagen-Poiseuille, aber nicht durch den Zementkern,
 - Modell 3: durch Zementkern in Kombination mit hochpermeablem Bereich an der Grenzfläche Stahl/Zement.
- Die Simulationen der Drucktests am Bohrlochsimulator belegen, dass es zur Ausbildung eines präferentiellen Fließpfades am Kontakt Zement/Stahlrohr kommt, höchstwahrscheinlich hervorgerufen durch Schrumpfungsprozesse des Zementkörpers bei Aushärtung. Das Konzept eines nahezu undurchlässigen Zementkerns mit präferentiellem Fließpfad zwischen Zement und Casing (Modell 2 bzw. 3) kann die hydraulischen Charakteristiken hinreichend genau beschreiben und wird durch die Beobachtung einer randlichen Alterationszone bestätigt

Geomechanische Untersuchungen zur Dichtigkeit von Salzkavernen

Ziele der Untersuchungen waren über geologische Analoga Aussagen zur Langzeitintegrität des Salzgesteins zu gewinnen und die Bedingungen der Kurzzeitbelastungen experimentell und numerisch zu simulieren, um auch den Herausforderungen einer höheren Ein- und Ausspeicherfrequenz (zur Kompensation der volatilen EE) entsprechend begegnen zu können.

Betrachtung bisheriger Havarien: Ausgehend von einem literaturbasierten Überblick des vorliegenden Kenntnisstandes zur Gasspeicherung im Salz mit den geowissenschaftlichen und geotechnischen Grundlagen ist festzuhalten, dass die in der Vergangenheit beim Gasspeicherbetrieb aufgetretenen Havarien in der Regel aus Problemen der technischen Installationen oder Bedienerfehlern resultierten, aber niemals aus einem ursächlichen Versagen der geologischen Barriere "Salz".

Aus der **geologischen Analoga-Untersuchung** und insbesondere der **Untersuchung von Gasfracs** ergab sich,

- dass es bei hohen Verformungsraten zu sehr starken Gasausbrüchen kommen kann. Bei niedrigen Verformungsraten kann Salz mit einer plastischen Verformung reagieren und der Gasdruck kann sich abbauen.
- Wenn der Druck der Kaverne das Deckgebirge erreicht kann es zu dramatischen Fluidverlusten mit einem kompletten Verlust der Integrität des Deckgebirges durch massive Fracs mit einer Reichweite von vielen 100 m kommen.
- Am Top der Salzlager kann es zu einer Freisetzung von großen CO₂-Mengen kommen, wenn das eingeschlossene Gas vom flüssigen in den gasförmigen Zustand übergeht. Dies kann bei Sprengungen oder bei Bohrungen Untertage vorkommen.
- Eine geringe Anisotropie der Horizontalspannung bzw. der Zugfestigkeit könnte für gezielte Fracs im Salz zur Entgasung genutzt werden.
- Bei langsamer Verringerung der Minimalspannung kann ein Frac des Salzes verhindert werden. Dies mag bei einer Verwahrung einer Kaverne mit Konvergenz ebenfalls zutreffen, wenn der Porendruckaufbau entsprechend langsam erfolgt.

Labortechnische Untersuchungen der Integrität von Kavernen: Der Einfluss geologischer Inhomogenitäten im Salzgebirge wurde experimentell untersucht. Daraus ergab sich, dass diese als hydraulisch/mechanische Schwachstellen wesentlichen Einfluss auf das Salzgebirge haben können. Es wird daher empfohlen, diese Aspekte zukünftig bei geomechanischen Nachweisrechnungen realer Standorte verstärkt mit einzubeziehen (E, T).

Numerische Simulation der Integrität von Salzkavernen.

Die vorliegenden Ergebnisse belegen, dass die unterschiedlichen Speichernutzungen (saisonal bzw. hochfrequent zyklisch) einen vergleichsweise geringen Einfluss gegenüber der Teufenlage des Speichers haben. Voraussetzung ist immer die Einhaltung gebirgsmechanischer Vorgaben bezüglich maximaler und minimaler Betriebsspeicherdrücke und Ein- und Ausspeicherraten. Diese sind lokationsabhängig (Teufe, Gebirgsdruck, Kavernengröße etc.).

Trotz dieses insgesamt positiven Ergebnisses gibt es Einschränkungen, aus denen Empfehlungen für zukünftige Untersuchungen resultieren. So wurde eine idealisierte Modellkaverne mit optimaler Firststruktur über einen relativ kurzen Zeitraum modelliert. Für andere Kavernen können lokal erhebliche Unterschiede (z.B. verschiedene Salzvarietäten, Inhomogenitäten infolge von Materialwechsel und potentielle Trennflächen) auftreten, die u.a. im Konturbereich aber auch im Bereich der Rohrtour zu unterschiedlichem Verformungsverhalten führen können. Daher ergeben sich folgende Empfehlungen für zukünftige Modellierungen:

- 1. Einbau von Interface-Elementen in den Kontaktflächen, mit denen die Kontaktflächeneigenschaften realistisch dargestellt werden (T)
- 2. Erstellung einer Langzeitprognose über die gesamte Nutzungsdauer durch Modelloptimierung und Erhöhung der Rechenkapazität (Leistungsfähigkeit)

In der Konsequenz erfordert eine geomechanische Nachweisführung zur Darstellung der langzeitigen Betriebssicherheit immer die Einbeziehung der tatsächlichen standortspezifischen Gegebenheiten, d.h. das geologische Modell mit der tatsächlichen Hohlraumgeometrie und den geplanten Speicherzyklen. Die Leistungsfähigkeit der vorliegenden Rechentools dazu wurde hier demonstriert.

<u>Unabhängige Überwachungsmöglichkeiten von Speichern, Prognosen von Oberflächen-</u> <u>deformationen in Raum und Zeit</u>

Die Ergebnisse zeigen, dass mit Hilfe von multitemporalen InSAR-Techniken unter Verwendung von Sentinel-1-Daten wertvolle Informationen über ein komplexes Oberflächenverschiebungsfeld wie im Falle des Kavernenspeicherfeldes Epe gewonnen werden können. Die linearen Absenkungsraten von bis zu –22 mm/Jahr im Zentrum des Kavernenfeldes stimmen bis auf wenige mm mit Ergebnissen aus jährlichen Wiederholungsnivellements überein (S, T). Die InSAR-Ergebnisse ergänzen die linienhaften Nivellements mit zusätzlichen Informationen aus der Fläche und liefern horizontale Bewegungsraten in Ost-West-Richtung. Folgende Hauptergebnisse können zusammengefasst werden:

- Die methodische Erweiterung von StaMPS durch DS-Vorverarbeitung und Einführung eines Deformationsmodells erhöht die Anzahl der für geodätische Messungen verfügbaren langzeitstabilen Rückstreupunkte am Erdboden und ermöglicht die Extraktion von Informationen auch in Gebieten, in denen keine PS verfügbar sind. So lässt sich eine vollständigere Beschreibung des Bewegungsfeldes an der Erdoberfläche erreichen.
- Erstmalig konnten unterjährige, zyklische Bodenbewegungen über einem Kavernenfeld belegt werden. Aufgrund der Korrelationen der InSAR-Zeitreihen mit den Füllständen der Kavernen wurde ein Kausalzusammenhang zwischen betriebliche Druckänderungen in den Kavernen mit zeitlich verzögerten Oberflächenverschiebungen abgeleitet.
- Der vorgestellte modellgetriebene Ansatz ermöglicht eine klare Trennung der druckbedingten Verschiebungen von Grundwasser induzierten Oberflächenbewegungen. Damit konnten die in der Aufgabenstellung genannten Ziele erreicht werden (S, T).

Die Ergebnisse der Experimente und der numerischen Simulationen des Projekts SUBI ergaben **vielfältige Verwertungsmöglichkeiten** für die Untertage-Gasspeicherung, den Betrieb der bereits bestehenden Poren-und Kavernenspeicher, aber ebenso für den Bau neuer Speicher, die auch für die H₂- oder CO₂-Speicherung übertragbar sind:

- Aufgrund von SUBI Entwicklungen stehen Experimentiermöglichkeit im Technikumsmaßstab zur Verfügung, die für UGS-Systeme quasi im Realmaßstab und *in-situ* Bedingungen genutzt werden können.
- Die Empfehlungen zum Sandstrahlen von Rohrtouren aufgrund der experimentellen Dichtigkeitsuntersuchungen können beim Einbau von Verrohrungen berücksichtigt werden und damit zur Dichtigkeit und Sicherheit der Speicher beitragen (W, T).
- Die Experimente an Salzproben zeigen die Abhängigkeit der Scherfestigkeit von der Belastungsrate. Obwohl die geomechanischen Eigenschaften belastungsabhängig sind, ist eine zuverlässige Charakterisierung durch Festigkeitstests möglich. Damit können verbesserte Materialkenngrößen für geomechanische Simulationen von Salzkavernen bereitgestellt werden.
- Es konnte gezeigt werden, dass aus CPV-, Depletion- und Aging- Tests poroelastische Materialparameter als Eingangsgrößen für Porenspeichermodellierungen gewonnen werden können.
- Mit der Zahl der Belastungs- und Entlastungszyklen verringerte sich die Durchlässigkeit des Deckschichtmergels. Dies verbessert das Rückhaltevermögen des Porenspeichersystems. Hier ist die Übertragung der methodischen Verfahren und Erkenntnisse der Experimente auf andere Speicher eine direkte Verwertungsmöglichkeit, um die Dichtigkeit über lange Zeiträume besser beurteilen zu können.
- Da bei der experimentellen Deformationsgeschichte keine den Speicherbetrieb negativ beeinflussende Materialermüdung auftrat, können die Speicherbetreiber langfristiger planen.
- Die Bereitstellung durch Veröffentlichung sowohl des Modellkonzeptes als auch der Software-Tools (THC-Simulation mit Retraso-CodeBright und PhreeqC) ermöglicht deren Nutzung für andere Arbeitsgruppen bzw. Anwender.

- Die Modellierung von Szenarien zur Bewertung der geologischen Dichtheit der Kavernen können für die Planung von Kavernen-Neusolung genutzt werden, aber auch für Risikoabschätzungen bei existierenden Kavernen. Dabei muss berücksichtigt werden, dass die Dichtigkeit einer Kaverne dann gewährleistet ist, wenn sie von einer ausreichend bemessenen Zone umgeben sind, in der die minimale Druckeinspannung σ_{MIN} um 10 % größer ist als der maximale Speicherdruck p_{MAX}.
- Die Modellierung von Szenarien zur Bewertung der geologischen Dichtheit bzw. mechanischen Integrität des Bohrlochverrohrungssystems zeigte, dass der Gebirgsdruck ausreichend hoch ist, um einen dichten Verbund zwischen Salz, Zement und Rohr zu gewährleisten. Durch die zyklischen Belastungsbedingungen ist kein Abscheren durch Kriechvorgänge im Salz um die Bohrung herum an Trennflächen (Stahl-Zement) zu erwarten. Dies bedeutet, dass auch bei höherfrequenten Ein- und Ausspeichervorgängen die Kaverneninfrastruktur ihre dichtende Funktion behält. Dies ist wichtig, um die Dichtigkeit auch bei bestehenden Kavernen für die zukünftige Nutzung abschätzen zu können.
- Die InSAR-Analyse wurde durch die Schaffung eines neuen Tools mit Erweiterung von StaMPS durch DS-Vorverarbeitung und Einführung eines Deformationsmodells ermöglicht. Auf diese Weise lässt sich eine vollständigere Beschreibung des Bewegungsfeldes an der Erdoberfläche erreichen.
- Der neu entwickelte Workflow zur Erstellung gekoppelter THM-Modelle kann allgemein auf UGS in porösen Medien angewendet werden. Dabei sind die Arbeitsschritte zur Parametrisierung des Modells über 1D MEM insbesondere für die Konversion älterer Erdgasfelder in UGS interessant, bei denen aus der Erschließungsphase nur unvollständige Logdaten vorliegen.
- Da mit dem gekoppelten Modellierungsansatz der vollständige Spannungstensor und der Porendruck für den gesamten Modellraum und für beliebige Betrachtungszeiträume berechnet werden kann, können die Ergebnisse aus SUBI helfen, Bohrungen zu projektieren, den Speicherbetrieb im Hinblick auf Sicherheit und Effizienz zu optimieren und insbesondere den maximalen sicheren Speicherdruck zu ermitteln.

Mit den Ergebnissen von SUBI konnten die Anforderungen an die in der obertägigen Anlage und in den Bohrungen verwendeten Materialien im Hinblick auf zyklische Belastungen durch fluktuierende Methanspeicherung ermittelt und Handlungsempfehlungen für einen sicheren und effizienten Anlagenbetrieb zur unterirdischen Methanspeicherung entwickelt werden. Darüber hinaus ist es gelungen, wissenschaftlichen Nachwuchs für die zukünftigen Aufgaben der Energiespeicherung zu qualifizieren.

6 Literatur

Abratis, M., Mädler, J., Hautmann, S., Leyk, H.-J., Meyer, R., Lippolt, H.J., Viereck-Goette, L. (2007): Two distinct Miocene age ranges of basaltic rocks from the Rhön and Heldburg areas (Germany) based on 40Ar/39Ar step heating data. Chemie der Erde/ Geochemistry, 67, 133-150.

Aggregated Gas Storage Inventory (AGSI) https://agsi.gie.eu/#/

- Aklujkar M, Haveman SA, DiDonato R, Chertkov O, Han CS, Land ML, Brown P, Lovley DR (2012) The genome of Pelobacter carbinolicus reveals surprising metabolic capabilities and physiological features. BMC Genomics 13:690. https://doi.org/10.1186/1471-2164-13-690
- An B. A., Kleinbub S., Ozcan O., Koerdt, A. (2020) Iron to Gas: Versatile Multiport Flow-Column Revealed Extremely High Corrosion Potential by Methanogen-Induced Microbiologically Influenced Corrosion (Mi-MIC), Frontiers in Microbiology, 11, p. 527. doi: 10.3389/fmicb.2020.00527

- Ansari, H., De Zan, F., Bamler, R. Efficient Phase Estimation for Interferogram Stacks. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 2018, 56, pp. 4109-4125.
- Babu BR, Maruthamuthu S, Rajasekar A, Muthukumar N, Palaniswamy N (2006) Microbiologically influenced corrosion in dairy effluent. Int J Environ Sci Tech 3:159–166
- Bache R, Pfennig N (1981) Selective isolation of Acetobacterium woodii on methoxylated aromatic acids and determination of growth yields. Archives of Microbiology 130:255–261. https://doi.org/10.1007/BF00459530
- Balch WE, Schoberth S, Tanner RS, Wolfe RS (1977) Acetobacterium, a new genus of hydrogenoxidizing, carbon dioxide-reducing, anaerobic bacteria. Int J Syst Evol Microbiol 27:355–361. https://doi.org/10.1099/00207713-27-4-355
- Bamler, R., Adam, N., Hinz, S., Eineder, M. SAR-Interferometrie für geodätische Anwendungen, AVN 7/2008, 243-252
- Baranyi, I., Lippolt, H.J. & Todt, W. (1976): Kalium-Argon Altersbestimmungen an tertiären Vulkaniten des Oberrheingarben-Gebietes: II Die Alterstraverese vom Hegau nach Lothringen. Oberrhein. Geol. Abh., 25: 41-62, Karlsruhe.
- Battumur U, Yoon Y-M, Kim C-H (2016) Isolation and characterization of a new Methanobacterium formicicum KOR-1 from an anaerobic digester using pig slurry. Asian-Australas J Anim Sci 29:586–593. https://doi.org/10.5713/ajas.15.0507
- Beech IB, Sunner JA, Hiraoka K (2005) Microbe–surface interactions in biofouling and biocorrosion processes. Int Microbiol 8:157–168
- Ben Hania W, Postec A, Aüllo T, Ranchou-Peyruse A, Erauso G, Brochier-Armanet C, Hamdi M, Ollivier B, Saint-Laurent S, Magot M, Fardeau M-L (2013) Mesotoga infera sp. nov., a mesophilic member of the order Thermotogales, isolated from an underground gas storage aquifer. Int J Syst Evol Microbiol 63:3003–3008. https://doi.org/10.1099/ijs.0.047993-0
- Berardino, P., Fornaro, G., Lanari, R., Sansosti, E. A New Algorithm for Surface Deformation Monitoring Based on Small Baseline Differential SAR Interferograms, IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing 2002, 40(11):2375 – 2383.
- Berest, P. & Brouard, B. (2003): Safety of Salt Caverns Used for Underground Storage. Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP, Vol 58, No. 3 pp. 361 - 384.
- Bérest, P., B. Brouard et J.G. Durup (2001): Tightness Tests in Salt-Cavern Wells. Oil & Gas Science and Technology Rev. IFP, Vol. 56 (2001), No. 5, pp. 451-469.
- Bezirksregierung Arnsberg Ölschaden in Gronau-Epe Daten und Fakten https://www.bezregarnsberg.nrw.de/themen/o/oelschaden_gronau/lageberichte/index.php.
- Bos, A.G., Usai, S., Spakman, W. A joint analysis of GPS motions and InSAR to infer the coseismic surface deformation of the Izmit, Turkey earthquake. Geophys. J. Int. 2004, 158, pp. 849-863.
- Bosak, P., Jaros, J., Spudil, J., Sulovsky P. & Vaclavek, V. (1998): Salt Plugs in the Eastern Zagros, Iran: Results of Regional Geological Reconnaissance, GeoLines (Praha), 7.
- Braun, R., Jahns, E., Stromeyer, D., Verfahren zur Bestimmung der räumlichen Gesteins- und Gebirgsanisotropie sowie des Gebirgsspannungszustandes an Probekörpern. Patent specification DE 198 30 196 C2. Issued patent No. 198 30 196, registered 06/07/1998, issued 30/11/2000
- Braun, R., Reinhold, C., Ermittlung von 3D-Gebirgsspannungszuständen für den Brenner Basistunnel, Geotechnik, 40, 250-264 (2017).
- Brosig, A., Scholze, F., W. Schneider, J.W. & Merkel, B. (2014): Nachhaltiges Rückstandsmanagement am Standort Hattorf (Haldenerweiterung Hattorf). Band 3.9 der Antragsunterlage: Fachgutachten, Geologisches, Hydrogeologisches und Numerisches Modell für das Umfeld der Produktions- und

Haldenstandorte des Werkes Werra; Teilgebiet 1: Hattorf/Unterbreizbach; Kartierungsbericht zur digitalen geologischen Karte 1: 25.000 des Produktions- und Haldenstandortes Werk Werra der K+S Kali GmbH.

- Brückner, D., Lindert, A., Wiedemann, M. (2003): The Bernburg Test Cavern A Model Study of cavern Abandonment. SMRI Fall Meeting, 5-8 Okt. 2003, Chester, UK, 69-89.
- Bryant RD, Jansen W, Boivin J, Laishley EJ, Costerton JW (1991) Effect of hydrogenase and mixed sulfate-reducing bacterial populations on the corrosion of steel. Appl Environ Microbiol 57:2804–2809
- Bu, Yuhuan; Chang, Zhiyang; Du, Jiapei; Liu, Dongming (2017): Experimental study on the thermal expansion property and mechanical performance of oil well cement with carbonaceous admixtures. In: RSC Advances 7 (46), S. 29240–29254. DOI: 10.1039/C7RA03504G.
- Burnol, A., Aochi, H., Raucoules, D., Veloso, F.M.L., Koudogbo, F.N., Fumagalli, A., Chiquet, P., Maisons,
 C. Wavelet-based analysis of ground deformation coupling satellite acquisitions (Sentinel-1, SMOS) and data from shallow and deep wells in Southwestern France. Nature Scientific Reports 2019, pp. 1-12.
- Cascini, L., Fornaro, G., Peduto, D. Advanced low- and full-resolution DInSAR map generation for slowmoving landslide analysis at different scales. Engineering Geology 2010, 112, pp. 29–42.
- Cha I-T, Min U-G, Kim S-J, Yim KJ, Roh SW, Rhee S-K (2013) Methanomethylovorans uponensis sp. nov., a methylotrophic methanogen isolated from wetland sediment. Antonie Van Leeuwenhoek 104:1005–1012. https://doi.org/10.1007/s10482-013-0020-4
- Chaparro, M.C., Klose, T., Hirsch, A., Schilling, F., Butscher, C., Blum, P., 2020. Modelling of wellbore cement alteration due to CO2-rich brine interaction in a large-scale autoclave experiment. International Journal of Greenhouse Gas Control (under review).
- Cheng L, Qiu T-L, Li X, Wang W-D, Deng Y, Yin X-B, Zhang H (2008) Isolation and characterization of Methanoculleus receptaculi sp. nov. from Shengli oil field, China. FEMS Microbiol Let 285:65–71
- Comola, F., Janna, C., Lovison, A., Minini, M., Tamburini, A., Teatini, P. Efficient global optimization of reservoir geomechanical parameters based on synthetic aperture radar-derived ground displacements. Geophysics 2015, 81, pp. 23-33.
- Costerton JW (1995) Overview of microbial biofilms. Journal of Industrial Microbiology 15:137–140
- Crosetto, M., Monserrat, O., Iglesias, R., Crippa, B. Persistent Scatterer Interferometry: Potential, Limits and Initial C-and X-band Comparison. Photogrammetric Engineering and Remote Sensing. 2010, 76, pp. 1061-1069.
- Cui M, Ma A, Qi H, Zhuang X, Zhuang G (2015) Anaerobic oxidation of methane: an "active" microbial process. Microbiologyopen 4:1–11. <u>https://doi.org/10.1002/mbo3.232</u>
- Dahle H, Birkeland N-K (2006) Thermovirga lienii gen. nov., sp. nov., a novel moderately thermophilic, anaerobic, amino-acid-degrading bacterium isolated from a North Sea oil well. Int J Syst Evol Microbiol 56:1539–1545. https://doi.org/10.1099/ijs.0.63894-0
- Darcy, H., Les Fontaines Publiques de la Ville de Dijon. Dalmont, Paris, pp. 647 (1856).
- Davey ME, O'Toole GA (2000) Microbial biofilms: from ecology to molecular genetics. Microbiology and Molecular Biology Reviews 64:847–867
- Deppe, S. & Pippig, M. (2002) Erkundung und Maßnahmen zur Beherrschung der Salzlösungszuflüsse im Grubenfeld Merkers. Kali und Steinsalz, S 40-49.
- Dietl, C., Braun, R., Baumgartner, H., Jahns, E., Rudolph, T., Complex Petrophysical Studies to Evaluate the Safety of an Underground Gas Storage in Porous Rocks, Search and Discovery Article #80642 (2018).

- Dinh HT, Kuever J, Mussmann M, Hassel AW, Stratmann M, Widdel F (2004) Iron corrosion by novel anaerobic microorganisms. Nature 427:829–832
- Doerfert SN, Reichlen M, Iyer P, Wang M, Ferry JG (2009) Methanolobus zinderi sp. nov., a methylotrophic methanogen isolated from a deep subsurface coal seam. Int J Syst Evol Microbiol 59:1064–1069. <u>https://doi.org/10.1099/ijs.0.003772-0</u>
- Dopffel, N., Jansen, S. and Gerritse, J. (2021) Microbial side effects of underground hydrogen storage – Knowledge gaps, risks and opportunities for successful implementation, International Journal of Hydrogen Energy, 46(12), pp. 8594–8606. doi: 10.1016/j.ijhydene.2020.12.058
- Dridi B, Fardeau M-L, Ollivier B, Raoult D, Drancourt M (2012) Methanomassiliicoccus luminyensis gen. nov., sp. nov., a methanogenic archaeon isolated from human faeces. Int J Syst Evol Microbiol 62:1902–1907. https://doi.org/10.1099/ijs.0.033712-0
- Duchrow, G. (1997): Der 100-jährige "Rhönmarsch" in die Kohlesäurefelder des südthüringischen Kalibergbaus.- Der Anschnitt, 49, H. 4.
- Dupraz C, Reid RP, Braissant O, Decho AW, Norman RS, Visscher PT (2009) Processes of carbonate precipitation in modern microbial mats. Earth-Science Reviews 96:141–162. https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2008.10.005
- Ebigbo A, Helmig R, Cunningham AB, Class H, Gerlach R (2010) Modelling biofilm growth in the presence of carbon dioxide and water flow in the subsurface. Advances in Water Resources 33:762–781. https://doi.org/10.1016/j.advwatres.2010.04.004
- Enning D, Garrelfs J (2014) Corrosion of iron by sulfate-reducing bacteria: new views of an old problem. Appl Environ Microbiol 80:1226–1236
- Enning D, Venzlaff H, Garrelfs J, Dinh HT, Meyer V, Mayrhofer K, Hassel AW, Stratmann M, Widdel F (2012) Marine sulfate-reducing bacteria cause serious corrosion of iron under electroconductive biogenic mineral crust. Environ Microbiol 14:1772–1787
- Esslinger, G. (1976): Vorkommen und Tektonik der Basalte im Kalisalzlager Buggingen (Südbaden).- Jh. Geol. Landesamt Baden-Württemberg, 18, 7-18, Freiburg im Breisgau.
- Etiope, G., Schoell, M. and Hosgörmez, H. (2011) Abiotic methane flux from the Chimaera seep and Tekirova ophiolites (Turkey): Understanding gas exhalation from low temperature serpentinization and implications for Mars, Earth and Planetary Science Letters, 310(1-2), pp. 96– 104. doi: 10.1016/j.epsl.2011.08.001
- Evans, D.J. (2008): An appraisal of Underground Gas Storage technologies and incidents, for the development of risk assessment methodology. Volume 1, Text. Volume 2, Figures and Tables. Nottingham, UK, British Geological Survey. (OR/07/023).
- Even, M. Adapting StaMPS for Jointly Processing Distributed Scatterers and Persistent Scatterers. Inst. Electr. Electron. Eng. Int. Geosci. Remote Sens. Symp. 2019, pp. 2046-2049.
- Even, M., Schulz, K. InSAR Deformation Analysis with Distributed Scatterers: A Review Complemented by New Advances. Remote Sensing 2018, 10(5), 744; https://doi.org/10.3390/rs10050744.
- Fabig, T., Naumann, D., Arnold, C., Rehmer, K.P. (2015): Fallstudie zur Bewertung der Entwicklung des Gebirgsdruckes auf rekomplettierten Gasspeicherkavernenbohrungen; Erdöl-Erdgas-Kohle, 131, 11, 408-414
- Feldens, P. & Mitchell, N.C. (2015): Salt Flows in the Central Red Sea, N.M.A. Rasul and I.C.F. Stewart (eds.), The Red Sea, Springer Earth System Sciences, DOI 10.1007/978-3-662-45201-1_12 Springer-Verlag Berlin.
- Ferretti, A., Fumagalli, A., Novali, F., De Zan, F., Rucci, A., Tebaldini, S. Process for Filtering Interferograms Obtained from SAR Images Acquired on the Same Area. CA Patent App. 2,767,144,

13 January 2011c.

- Ferretti, A., Fumagalli, A., Novali, F., Prati, C., Rocca, F., Rucci, A. A New Algorithm for Processing Interferometric Data-Stacks: SqueeSAR. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 2011a, 49, pp. 3460-3470.
- Ferretti, A., Prati, C., Rocca, F. Permanent scatterers in SAR interferometry. IEEE Trans. Geosci. Remote Sens. 2001, 39(1):8-20.
- Ferretti, A., Tamburini, A., Novali, F., Fumagalli, A., Falorni, G., Rucci, A. Impact of high resolution radar imagery on reservoir monitoring. Energy Procedia 2011b, 4, pp. 3465–3471.
- Finkenstadt VL, Côté GL, Willett JL (2011) Corrosion protection of low-carbon steel using exopolysaccharide coatings from Leuconostoc mesenteroides. Biotechnol Lett 33:1093–1100. https://doi.org/10.1007/s10529-011-0539-2
- Finster K, Bak F, Pfennig N (1994) Desulfuromonas acetexigens sp. nov., a dissimilatory sulfur-reducing eubacterium from anoxic freshwater sediments. Archives of Microbiology 161:328–332. https://doi.org/10.1007/BF00303588
- Finster K, Coates JD, Liesack W, Pfennig N (1997) Desulfuromonas thiophila sp. nov., a new obligately sulfur-reducing bacterium from anoxic freshwater sediment. Int J Syst Bacteriol 47:754–758. https://doi.org/10.1099/00207713-47-3-754
- Fokker, P.A., Visser, K., Peters, E., Kunakbayeva, G., Muntendam-Bos, A.G. Inversion of surface subsidence data to quantify reservoir compartmentalization: A field study. Journal of Petroleum Science and Engineering 2012, 96-97, pp. 10-21.
- Fuhrmann, T., Caro Cuenca, M., Knöpfler, A., van Leijen, F.J., Mayer, M., Westerhaus, M., R.F. Hanssen, R.F., Heck, B. Estimation of small surface displacements in the Upper Rhine Graben area from a combined analysis of PS-InSAR, levelling and GNSS data. Geophys. J. Int. 2015, 203, pp. 614–631.
- Fuhrmann, T., Garthwaite, M.C. Resolving Three-Dimensional Surface Motion with InSAR: Constraints from Multi-Geometry Data Fusion. Remote Sens. 2019, 11, 241; doi:10.3390/rs11030241.
- Gillhaus, A. (2007): Natural gas storage in salt caverns Present status, developments and future trends in Europe, SMRI Spring Meeting 2007, Basel, 29/4 02/05/2007, pp. 18.
- Götz M, Lefebvre J, Mörs F, McDaniel Koch A, Graf F, Bajohr S, Reimert R, Kolb T (2016) Renewable Power-to-Gas: A technological and economic review. Renewable Energy 85:1371–1390. <u>https://doi.org/10.1016/j.renene.2015.07.066</u>
- Gregory S. P., Barnett M. J., Field L. P., Milodowski A. E. (2019). Subsurface microbial hydrogen cycling: natural occurrence and implications for industry. Microorganisms 7:53.
- Grünthal, G. & Strohmeyer, D. (1992): The Recent Crustal Stress Field in Central Europe: Trajectories und Finite Element Modeling. JGR 97, 11805-11920.
- Grünthal, G., Minkley, W. (2005): Bergbauinduzierte seismische Aktivitäten als Quelle seismischer Belastungen - Zur Notwendigkeit der Ergänzung der Karte der Erdbebenzonen der DIN 4149:2005-04. - Bautechnik, 82, 8, 508-513, 10.1002/bate.200590167.
- GSF1996:, Auszug aus dem Forschungsbericht 1996, Forschungsbergwerk Asse Salz wird in ein Bergwerk geblasen.- ISBN 0941-3847.
- Gümbel, F. (2008): Das Dietrichsberg-Maar. Mitteilungen aus dem Biosphärenreservat Rhön, Heft 13: 6–20; Kaltensundheim
- Hamilton WA (1985) Sulphate-reducing bacteria and anaerobic corrosion. Ann Rev Microbiol 39:195– 217
- Hasemann, W. (1952): Das Ankaratrit-Vorkommen im Kalisalzlager von Buggingen in Baden. Mitt.bl.

bad. Geol. Landesanst., S. 106-116, Freiburg im Breisgau.

- Heidbach, O., et al. (2018): The World Stress Map database release 2016: Crustal stress pattern across scales. Tectonophys., 744, 484-498, doi:10.1016/j.tecto.2018.07.007
- Heidbach, O., J. Reinecker, M. Tingay, B. Müller, B. Sperner, K. Fuchs, and F. Wenzel (2007): Plate boundary forces are not enough: Second- and third-order stress patterns highlighted in the World Stress Map database. Tectonics, 26, TC6014, doi:10.1029/2007TC002133
- Heidbach, O., M. O. Ziegler, and D. Stromeyer (2020): Manual of the Tecplot 360 Add-on GeoStress v2.0. World Stress Map Technical Report 20-01, 63 pp. doi:10.2312/wsm.2020.001
- Heidbach, O., T. Hergert, K. Reiter, and S. Giger (2013): Local stress field sensitivity analysis case study Nördlich Lägern. NAGRA Arb. Ber. NAB 13-88, 50 pp.
- Henk, A. (2005): Pre-drilling prediction of the tectonic stress field with geomechanical models. first break 23, 53-57,
- Hergert, T., O. Heidbach, K. Reiter, S. Giger, and P. Marschall (2015): Stress field sensitivity analysis in a sedimentary sequence of the Alpine foreland, northern Switzerland. Solid Earth, 6, 533-552, doi:10.5194/se-6-533-2015
- Hondt S, Jørgensen BB, Miller DJ, Batzke A, Blake R, Cragg BA, Cypionka H, Dickens GR, Ferdelman T, Hinrichs K-U, Holm NG, Mitterer R, Spivack A, Wang G, Bekins B, Engelen B, Ford K, Gettemy G, Rutherford SD, Sass H, Skilbeck CG, Aiello IW, Guèrin G, House CH, Inagaki F, Meister P, Naehr T, Niitsuma S, Parkes RJ, Schippers A, Smith DC, Teske A, Wiegel J, Padilla CN, Acosta JLS (2004) Distributions of microbial activities in deep subseafloor sediments. Science 306:2216–2221. https://doi.org/10.1126/science.1101155
- Hooper, A., Segall, P., Zebker, H. Persistent scatterer interferometric synthetic aperture radar for crustal deformation analysis, with application to Volcán Alcedo, Galápagos. J. Geophys. Res. Solid Earth 2007, 112, pp. 1-21.
- Horváth, B. & Zander-Schiebenhöfer, D. (2020): Convergence-induced Stresses on Casing and Cementation due to Salt Cavern Operation, 5th International Itasca Symposium | Vienna | 19/02/2020.
- Hosgormez H, Etiope G, Yalcin MN (2008) New evidence for a mixed inorganic and organic origin of the Olympic Chimaera fire (Turkey): a large onshore seepage of abiogenic gas. Geofluids 8:263–273. https://doi.org/10.1111/j.1468-8123.2008.00226.x
- Hu, J., Li, Z.W., Ding, X.L., Zhu, J.J., Zhang, L., Suna, Q. Resolving three-dimensional surface displacements from InSAR measurements: A review. Earth-Science Reviews 2014, 133, pp. 1–17.
- Huerta, N.J., Checkai, D., Bryant, S.L., 2009. Utilizing sustained casing pressure analog to provide parameters to study CO2 leakage rates along a wellbore. SPE International Conference on CO2 Capture, Storage, and Utilization. Society of Petroleum Engineers.
- Hutten TJ, Bongaerts HC, van der Drift C, Vogels GD (1980) Acetate, methanol and carbon dioxide as substrates for growth of Methanosarcina barkeri. Antonie Van Leeuwenhoek 46:601–610
- IfG (2007): Abschlussbericht zum UFOPLAN-Vorhabens SR-2470 "Untersuchungen zur Barrierenintegrität im Hinblick auf das Ein-Endlager-Konzept", 255 S.
- IfG (2017): Überprüfung des perkolationsgetriebenen Transports von Fluiden im Wirtsgestein Steinsalz unter Bedingungen für ein Endlager (PeTroS), Zwischenbericht Aufarbeitung des relevanten Standes von Wissenschaft und Technik, FKZ 4717E03250, Institut für Gebirgsmechanik GmbH, 04279 Leipzig, Download vom 07.07.2019.
- Imachi H, Sakai S, Ohashi A, Harada H, Hanada S, Kamagata Y, Sekiguchi Y (2007) Pelotomaculum propionicicum sp. nov., an anaerobic, mesophilic, obligately syntrophic, propionate-oxidizing

bacterium. Int J Syst Evol Microbiol 57:1487–1492. https://doi.org/10.1099/ijs.0.64925-0

- ITASCA (2013): FLAC3D Fast Lagrangian Analysis of Continua in 3 Dimensions, Version 5.01 ITASCA Consulting Group Inc. Minneapolis, Minnesota USA.
- Jackson M.P.A. & Houdec M. R. (2017): Salt Tectonics: Principles and Practice, Publisher: Cambridge University Press, ISBN: 9781139003988.
- Jentsch M, Trost T, Sterner M (2014) Optimal use of Power-to-Gas energy storage systems in an 85% renewable energy scenario. Energy Procedia 46:254–261. https://doi.org/10.1016/j.egypro.2014.01.180
- Joughin, I.R., Kwok, R., Fahnestock, M.A. Interferometric Estimation of Three-Dimensional Ice-Flow Using Ascending and Descending Passes. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 1998, 36, pp. 25-37.
- Jutten, J.J., Hayman, A.J., 1993. Microannulus effect on cementation logs: experiments and case histories. SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference, Society of Petroleum Engineers.
- Kampes, B., Hanssen, R., Perski, Z. Radar interferometry with public domain tools. Proc. of Fringe Workshop 2003, Frascati, Italien, 1.12. 5. 12. 2003.
- Kato S (2016) Microbial extracellular electron transfer and its relevance to iron corrosion. Microb Biotechnol 9:141–148
- Katzung, G., Krull, P., Kuhn, F.: Die Havarie der UGS-Sonde Lauchstädt 5 im Jahre 1988 Auswirkungen und geologische Bedingungen. Z. Angew. Geologie. 42, 19 26 (1996).
- Kazemi, M., Wojtanowicz, A.K., 2014. Development of improved testing procedure for wells with sustained casing pressure. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Society of Petroleum Engineers.
- Keller, J. & Henjes-Kunst, F (o. D.): http//www.the-conference.com/JconfAbs/4/320/html.
- Ketzer JM, Iglesias R, Einloft S, Dullius J, Ligabue R, Lima V de (2009) Water–rock–CO2 interactions in saline aquifers aimed for carbon dioxide storage: Experimental and numerical modeling studies of the Rio Bonito Formation (Permian), southern Brazil. Applied Geochemistry 24:760–767. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2009.01.001
- Kip N, van Veen JA (2015) The dual role of microbes in corrosion. ISME J 9:542-551
- Klose, T., Chaparro, M. C., Schilling, F., Butscher, C., Klumbach, S., Blum, P., 2020. Fluid Flow Simulations of a Large-Scale Borehole Leakage Experiment. Transport in Porous Media, 1–21.
- Knöfel, S. (2018): "Geomechanische Charakterisierung der Eigenschaften von potentiellen Trennflächen in verschiedenen Salzgesteinen – Ein Beitrag zur Bewertung der Firstsicherheit im geschichteten Gebirge", Masterarbeit, TU BA Freiberg, 10.01.2018, 97 S.
- Knoll, P. (1979).: Analyse von Gebirgsspannungen in Bergrevieren der DDR. Freib. Horsch.-H. C 349. S. 61-73.
- Kormas KA, Smith DC, Edgcomb V, Teske A (2003) Molecular analysis of deep subsurface microbial communities in Nankai Trough sediments (ODP Leg 190, Site 1176). FEMS Microbiol Ecol 45:115–125
- Koukouzas, N., Kypritidou, Z., Vasilatos, C., Tsoukalas, N., Rochelle, C. A., Purser, G., 2017. Geochemical modeling of carbonation of hydrated oil well cement exposed to co2-saturated brine solution. Applied Geochemistry 85, 35–48.
- Koukouzas, N., Kypritidou, Z., Vasilatos, C., Tsoukalas, N., Rochelle, C. A., Purser, G., 2017. Geochemical modeling of carbonation of hydrated oil well cement exposed to co2-saturated brine solution. Applied Geochemistry 85, 35–48.

- Kromer M., Haist M., Müller HS. (2014): Formation mechanisms of cementation flaws in well cementations under consideration of paste rheology. In: Bastien J, Rouleau N, Fiset M, Thomassin M (ed) Proceedings of the 10th fib international PhD symposium in civil engineering, Université Laval, Quebec.
- Kuehn, F., Hoth, P., Stark, M., Burren, R., Hole, J. Experience with Satellite Radar for Gas Storage Monitoring. ERDÖL ERDGAS KOHLE 125 2009, Heft 11, pp. 452-460.
- Kühn, M., Streibel, M. Nakaten, N., Kempka, T., Integrated underground gas storage of CO2 and CH4 to decarbonize the "power-to-gas-to-gas-to-power" technology, Energy Procedia, 59, 9-15 (2014).
- Kukla, P. & Urai J.L. (2015): Ölaustritte an der Erdoberfläche infolge einer Leckage an der Verrohrung der Kavernenbohrung Epe S5, Zusammenfassender Bericht zu den Ursachen der Ölaustritte und deren Verbreitung. Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen.
- Lai M-C, Chen S-C, Shu C-M, Chiou M-S, Wang C-C, Chuang M-J, Hong T-Y, Liu C-C, Lai L-J, Hua JJ (2002) Methanocalculus taiwanensis sp. nov., isolated from an estuarine environment. Int J Syst Evol Microbiol 52:1799–1806. https://doi.org/10.1099/00207713-52-5-1799
- LBEG (2016) "Erdöl und Erdgas in der Bundesrepublik Deutschland 2015".
- Lempp, Chr., Menezes, F. & A. Schöner (2020) : Evolution of Shear bands and cracks in multi-stage triaxial tests with water-saturated sandstone: A study of micro-tectonics with a fractal perspective, Journal of Structural Geology, 138, <u>https://doi.org/10.1016/j.jsg.2020.104092</u>.
- Lerm S, Alawi M, Miethling-Graff R, Wolfgramm M, Rauppach K, Seibt A, Würdemann H (2011) Influence of microbial processes on the operation of a cold store in a shallow aquifer: impact on well injectivity and filter lifetime. Grundwasser 16:93–104. https://doi.org/10.1007/s00767-011-0165-x
- Lerm S, Westphal A, Miethling-Graff R, Alawi M, Seibt A, Wolfgramm M, Würdemann H (2013) Thermal effects on microbial composition and microbiologically induced corrosion and mineral precipitation affecting operation of a geothermal plant in a deep saline aquifer. Extremophiles 17:311–327
- Lin, K.-F., Perissin, D. Identification of Statistically Homogeneous Pixels Based on One-Sample Test. Remote Sensing 2017, pp. 1-13.
- Lippolt, H.J., Gentner, W. & Wimmenauer, W. (1963): Altersbestimmungen nach der Kalium-Argon-Methode an tertiären Eruptivgesteinen Südwestdeutschlands. Jh. Geol. LA. Baden-Württ., 6, 507-538, Freiburg i.Br.
- Little BJ, Lee JS (2007) Microbiologically influenced corrosion. John Wiley & Sons
- Liu, W., Völkner, E., Minkley, W., Popp, T. Zusammenstellung der Materialparameter für THM-Modellberechnungen – Ergebnisse aus dem Vorhaben KOSINA 2017, BGR, 88 Seiten.
- Lomans BP, Maas R, Luderer R, Op den Camp, Huub J. M., Pol A, van der Drift C, Vogels GD (1999) Isolation and characterization of Methanomethylovorans hollandica gen. nov., sp. nov., isolated from freshwater sediment, a methylotrophic methanogen able to grow on dimethyl sulfide and methanethiol. Appl Environ Microbiol 65:3641–3650. https://doi.org/10.1128/AEM.65.8.3641-3650.1999
- Lützner, H., Ellenberg, J., Falk, F., Grumbt., Stackebrandt, W., Stoll, A. & Wendland, F. (1981): Herzynische und rheinische Tektonik in Südwestthüringen. Z. geol. Wiss., Berlin, 12, S. 1487-1489.
- Lux, K.-H., U. Düsterloh & Z. Hou (2002a): Erhöhung der Wirtschaftlichkeit von Speicherkavernen durch Anwendung eines neuen Entwurfs- und Nachweiskonzeptes (Teil I). Erdöl Erdgas Kohle, Vol. no.6.
- Lux, K.-H., U. Düsterloh & Z. Hou (2002b): Erhöhung der Wirtschaftlichkeit von Speicherkavernen durch Anwendung eines neuen Entwurfs- und Nachweiskonzeptes (Teil II). Erdöl Erdgas Kohle, Vol.

no.7/8.

- Manzo, M., Ricciardi, G.P., Casu, F., Ventura, G., Zeni, G., Borgström, S., Berardino, P., Del Gaudio, C., Lanari, R. Surface deformation analysis in the Ischia Island (Italy) based on spaceborne radar interferometry. Journal of Volcanology and Geothermal Research 2006, 151, pp. 399–416.
- Mechalas BJ, Rittenberg SC (1960) Energy coupling in Desulfovibrio desulfuricans. J Bacteriol 80:501– 507
- Megonigal JP, Hines ME, Visscher PT (2003) Anaerobic metabolism: Linkages to trace gases and aerobic processes. Treatise on Geochemistry 8:317–424. https://doi.org/10.1016/B978-0-08-095975-7.00808-1
- Menzel, W. & Schreiner, W. (1993): Das Kavernenentwurfskonzept des Instituts für Gebirgsmechanik Leipzig für die Gasspeicherung in Salzformationen. Erdöl-Erdgas-Kohle, 109. Jg., Heft 1, 17 – 22
- Meyers, M. A., Chawla, K. K. Mechanical behavior of Materials, 2nd edition, Prentice Hall, Inc., 2009.
- Meyn, V., Die Bedeutung des Sperrdruckes (threshold pressure) für den Fluidtransport in niedrigstpermeablen Gesteinen: Experimentelle und theoretische Aspekte. DGMK-Tagungsbericht 9901, 255-264 (1999).
- Michel, R., Avouac, J.P., Taboury, J. Measuring ground displacements from SAR amplitude images: application to the Landers earthquake. Geophys. Res. Lett. 1999a, 26, pp. 875–878.
- Michel, R., Avouac, J.P., Taboury, J. Measuring near field coseismic displacements from SAR images: application to the Landers earthquake. Geophys. Res. Lett. 1999b 26, pp. 3017–3020.
- Ministerium für Wirtschaft, Energie Industrie, Mittelstand und Handwerk des Landes Nordrhein-Westfalen: Sachstandsbericht Ölaustritte in Gronau-Epe und ihre Auswirkungen. https://www.landtag.nrw
- Minkley, W. (2004): Gebirgsmechanische Beschreibung von Entfestigung und Sprödbruch erscheinungen im Carnallitit. Schriftenreihe des Institutes für Gebirgsmechanik- Band 1, Shaker Verlag Aachen.
- Minkley, W. (2015): Integrität von Salzbarrieren und Endlagerung Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle in tiefen Bohrlöchern in Salzformationen. Vortrag zum Workshop "Final Disposal in Deep Boreholes Using Multiple Geological Barriers: Digging Deeper for safety" Juni 2015, Berlin; GRS – 405, ISBN 978-3-944161-87-7.
- Minkley, W., Knauth, M., Fabig, T. & Farag, N. (2015a): Stability and integrity of salt caverns under consideration of hydro-mechanical loading. Mechanical Behaviour of Salt VIII, Rapid City, USA, 26-28 May 2015 (eds. Lance, R. et. al.), CRC Press, 217–227.
- Minkley, W. (2015b): Integrität von Salzgesteinen und praktische Relevanz für die Verwahrung von Salzkavernen, https://www.kivi.nl/uploads/media/5677f1e176830/Integrit%C3%A4t%20von%20 Salzgesteinen%20und%20praktische%20Relevanz%20f%C3%BCr%20die%20Verwahrung%20von %20Salzkav%20-

%20Wolfgang%20Minkley,%20Institut%20f%C3%BCr%20Gebirgsmechanik%20GmbH%20(IfG).p df, download vom 20.12.2018

- Minkley, W., Lindert, A., Schreiner, W. (2005): Zur Gebirgsmechanik von Gasspeicherkavernen, Freiberger Forschungshefte C505.
- Mitchell AC, Phillips AJ, Hiebert R, Gerlach R, Spangler LH, Cunningham AB (2009) Biofilm enhanced geologic sequestration of supercritical CO2. International Journal of Greenhouse Gas Control 3:90–99. https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2008.05.002
- Mitchell MJ, Jensen OE, Cliffe KA, Maroto-Valer MM (2010) A model of carbon dioxide dissolution and mineral carbonation kinetics. Proc. R. Soc. A 466:1265–1290.

https://doi.org/10.1098/rspa.2009.0349

- Mitterer RM (2010) Methanogenesis and sulfate reduction in marine sediments: A new model. Earth and Planetary Science Letters 295:358–366. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2010.04.009
- Mochimaru H, Tamaki H, Hanada S, Imachi H, Nakamura K, Sakata S, Kamagata Y (2009) Methanolobus profundi sp. nov., a methylotrophic methanogen isolated from deep subsurface sediments in a natural gas field. Int J Syst Evol Microbiol 59:714–718. https://doi.org/10.1099/ijs.0.001677-0
- Mogi, K. Relations between the eruptions of various volcanoes and the deformations of the ground surfaces around them. Bulletin of the Earthquake Research Institute, University of Tokyo 1958, 36, pp. 99-134.
- Mohr, J.J., Reeh, N., Madsen, S.N. Three-dimensional glacial flow and surface elevation m easured with radar interferometry. Nature 1998, 391, pp. 273-276.
- Monti Guarnieri, A., Tebaldini, S. On the Exploitation of Target Statistics for SAR Interferometry Applications. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 2008, 46, pp. 3436-3443.
- Morawietz, S., O. Heidbach, K. Reiter, M. O. Ziegler, M. Rajabi, G. Zimmerman, B. Müller, and M. Tingay (2020): An open-access stress magnitude database for Germany and adjacent regions. Geothermal Energy, doi:10.1186/s40517-020-00178-5
- Morgan, J., Snider-Lord, A.C., Ambs, D.C. InSAR for monitoring cavern integrity: 2D surface movement over Bryan Mound, Solution Mining Research Institute Spring 2018 Technical Conference, Salt Lake City, Utah, USA, 18 June 2018.
- Morozova D, Wandrey M, Alawi M, Zimmer M, Vieth A, Zettlitzer M, Würdemann H (2010) Monitoring of the microbial community composition in saline aquifers during CO2 storage by fluorescence in situ hybridisation. Int J Greenh Gas Con 4:981–989
- Müller V, Blaut M, Gottschalk G (1986) Utilization of Methanol plus Hydrogen by Methanosarcina barkeri for Methanogenesis and Growth. Appl Environ Microbiol 52:269–274
- Nesbø CL, Bradnan DM, Adebusuyi A, Dlutek M, Petrus AK, Foght J, Doolittle WF, Noll KM (2012) Mesotoga prima gen. nov., sp. nov., the first described mesophilic species of the Thermotogales. Extremophiles 16:387–393. https://doi.org/10.1007/s00792-012-0437-0
- Olivella, S., Gens, A., Carrera, J., Alonso, E. E., 1996. Numerical formulation for a simulator (CODE_BRIGHT) for the coupled analysis of saline media. Engineering Computations 13 (7), 87–112.
- Parkes RJ, Cragg BA, Wellsbury P (2000) Recent studies on bacterial populations and processes in subseafloor sediments: A review. Hydrogeology Journal 8:11–28
- Pellizzari L, Neumann D, Alawi M, Voigt D, Norden B, Würdemann H (2013) The use of tracers to assess drill-mud penetration depth into sandstone cores during deep drilling: method development and application. Environ Earth Sci 70:3727–3738
- Pepe, A., Yang, Y., Manzo, M., Lanari, R. Improved EMCF-SBAS processing chain based on advanced techniques for the noise-filtering and selection of small baseline multilook DInSAR interferograms. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 2015, 53, pp. 4394-4417.
- Popp, T., Minkley, W., Wiedemann, M. & Salzer K. (2014): Gas-pressure induced integrity of salt formations. In: R. Shaw (ed.). Gas Generation and Migration in Radioactive Waste Repositories. Geological Society. London, Special Publications, first published November 14, 2014, doi 10.1144/SP415.3, 16p.
- Prevedel B, Wohlgemuth L, Henninges J, Krüger K (2008) The CO2SINK boreholes for geological storage testing. Sci Drill:32–37
- Przybycin, A. M., M. Scheck-Wenderoth, and M. Schneider (2014): Assessment of the isostatic state

and the load distribution of the European Molasse basin by means of lithospheric-scale 3D structural and 3D gravity modelling. International Journal of Earth Sciences, 104(5), 1405-1424, doi:10.1007/s00531-014-1132-4

- Ragsdale SW, Pierce E (2008) Acetogenesis and the Wood-Ljungdahl pathway of CO2 fixation. Biochim Biophys Acta 1784:1873–1898. https://doi.org/10.1016/j.bbapap.2008.08.012
- Rajabi, M., O. Heidbach, M. Tingay, and K. Reiter (2017): Prediction of the present-day stress field in the Australian continental crust using 3D geomechanical–numerical models. Australian J. Earth Sci., 64(4), 435-454, doi:10.1080/08120099.2017.1294109
- Reiter, K., Heidbach, O., Reinecker, J., Müller, B., Röckel, T. (2015): Spannungskarte Deutschland 2015. - Erdöl Erdgas Kohle, 131, 11, pp. 437–442.
- Reiter, K., O. Heidbach, B. Müller, J. Reinecker, and T. Röckel (2016): Spannungskarte Deutschland 2016, GFZ German Research Centre for Geosciences, Potsdam, doi:10.5880/WSM.Germany2016
- Reiter, K., O. Heidbach, J. Reinecker, B. Müller, and T. Röckl (2015): Spannungskarte Deutschland 2015. Erdöl Erdgas Kohle, 131(11), 437-442,
- RESPEC (2004): Topical Report RSI-1760. Salt Cavern Thermal Simulator Version 2.0 User's Manual Respec an Integrated Consulting and Service Company, South Dakota USA.
- Rice DD (1993) Biogenic gas: controls, habitats, and resource potential. United States Geological Survey, Professional Paper;(United States) 1570
- Rocca, F., Rucci, A., Ferretti, A., Bohane, A. Advanced InSAR interferometry for reservoir monitoring. first break 2013,31, pp. 77-85.
- Rokahr, R.B., Staudtmeister, K., Zander-Schiebenhöfer, D. (1998): Rock Mechanical Determination of the Maximum Internal Pressure for Gas Storage Caverns in Rock Salt, Rome: SMRI Fall Meeting.
- Rokahr, R.B., Staudtmeister, K., Zapf, D. (2008): Influence of Different Loading Histories on the Rock Mechanical Behavior of a Gas Cavern at Shallow Depth, Porto: SMRI Spring Meeting.
- Rübel, A., Mönig, J. (2008): Gase in Endlagern im Salz. Workshop der GRS in Zusammenarbeit mit dem PTKA-WTE, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-242, Braunschweig.
- Rucci, A., Vasco, D.W., Ferretti, A. Fluid pressure arrival time tomography: Estimation and assessment in the presence of inequality constraints, with an application to a producing gas field at Krechba, Algeria. Geophysics 2010, 75, pp. 39–55.
- Rucci, A., Vasco, D.W., Novali, F. Monitoring the geologic storage of carbon dioxide using multicomponent SAR interferometry. Geophys. J. Int. 2013, 193, pp. 197–209.
- Saaltink, M. W., Batlle, F., Ayora, C., Carrera, J., Olivella, S., 2004. RETRASO, a code for modeling reactive transport in saturated and unsaturated porous media. Geologica Acta 2 (3), 235–251.
- Sahl JW, Schmidt R, Swanner ED, Mandernack KW, Templeton AS, Kieft TL, Smith RL, Sanford WE, Callaghan RL, Mitton JB, Spear JR (2008) Subsurface microbial diversity in deep-granitic-fracture water in Colorado. Appl Environ Microbiol 74:143–152
- Samiei-Esfahany, S., Martins, J.E., van Leijen, F., Hanssen, R.F. Phase Estimation for Distributed Scatterers in InSAR Stacks Using Integer Least Squares Estimation. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 2016, 54, pp. 5671-5687.
- Schenk, A. PS-Interferometrie in urbanen Räumen Optimierte Schätzung von Oberflächenbewegungen mittels Mult SBAS Verfahren 2014, Dissertation, Geodätisches Institut des KIT, 131 Seiten, Karlsruhe 2014.
- Schiebahn S, Grube T, Robinius M, Tietze V, Kumar B, Stolten D (2015) Power to gas: Technological overview, systems analysis and economic assessment for a case study in Germany. International

Journal of Hydrogen Energy 40:4285–4294. https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.01.123

- Schilling, F. R., Bieberstein, A., Eckhardt, J.-D., Haist, M., Hirsch, A., Klumbach, S., Kromer, M., Mühlbach, J., Müller, B. I., Müller, H. S., Neumann, T., Schläger, S., Triantafyllidis, T., 2016. CO2-Speicherung-Bohrlochsimulator COBRA (CO2 Bohrlochverschluss Versuchsanlage). Tech. Rep., Karlsruher Institut für Technologie (KIT).
- Schilling, F. R., Bieberstein, A., Eckhardt, J.-D., Haist, M., Hirsch, A., Klumbach, S., Kromer, M., Mühlbach, J., Müller, B. I. R., Müller, H. S., Neumann, T., Schläger, S., Triantafyllidis, T., 2015. Long-Term Safety of Well Abandonment: First Results from Large Scale Laboratory Experiments (COBRA). Springer International Publishing, pp. 115–138.
- Schlegel ME, Zhou Z, McIntosh JC, Ballentine CJ, Person MA (2011) Constraining the timing of microbial methane generation in an organic-rich shale using noble gases, Illinois Basin, USA. Chem Geol 287:27–40. https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2011.04.019
- Schleicher, H. & Keller, J. (1991): Isotopengeochemie der Alkalivulkanite und Karbonatite des Kaiserstuhls: Aussagen zur Magmengenese und zur isotopischen Zusammensetzung des Erdmantels.- Jh. Geol. LA. Baden-Württ., 33, S. 33-57., Freiburg i. Br.
- Schreiner W., Lindert A., Brückner D. (2010): IfG Cavern Design Concept. Rock mechanical aspects for the development and operation of rock salt caverns. Proc. SMRI Fall Meeting, Leipzig, Germany, 67-82.
- Schröder, B. & Peterek, A. (2002): Känozoische Morphotektonik und Abtragung zwischen Hochrhön und Heldburger Gangschar. Z. geol. Wiss. 30, 263-276.
- Seithel, R., U. Steiner, B. Müller, C. Hecht, and T. Kohl (2015): Local stress anomaly in the Bavarian Molasse Basin. Geothermal Energy, 3(1), doi:10.1186/s40517-014-0023-z
- Shamshiri, R., Nahavandchu, H., Motagh, M., Hooper, A. Efficient Ground Surface Displacement Monitoring Using Sentinel-1 Data: Integrating Distributed Scatterers (DS) Identified Using Two-Sample t-Test with Persistent Scatterers (PS). Remote Sensing 2018, pp. 1-14.
- Shen L-D, Ouyang L, Zhu Y, Trimmer M (2019) Active pathways of anaerobic methane oxidation across contrasting riverbeds. ISME J 13:752–766. https://doi.org/10.1038/s41396-018-0302-y
- Stadler R, Fuerbeth W, Harneit K, Grooters M, Woellbrink M, Sand W (2008) First evaluation of the applicability of microbial extracellular polymeric substances for corrosion protection of metal substrates. Electrochimica Acta 54:91–99. https://doi.org/10.1016/j.electacta.2008.04.082
- Stax, R., Barge, H.J., Mulder, L. (2004): Erweiterung des Solfeldes Barradeel der Frisia Zout BV durch zwei neue Kavernenbohrungen, Kali und Steinsalz, Nr. 2, 2004.
- Strobel, G., Hagemann, B. Huppert, T.M. and L. Ganzer (2020). Underground bio-methanation: Concept and potential. Renewable and Sustainable Energy Reviews. Vol.23.var, D., Kumar, S. and Foroozesh, J. (2020) Underground hydrogen storage: A comprehensive review. International Journal of Hydrogen Energy. doi: 10.1016/j.ijhydene.2020.08.138
- Talbot, C. J. 1998. Extrusions of Hormuz salt in Iran. In: Blundell, D. J. & Scott, A. C. (eds) Lvell: The Past is the Key to the Present. Geological Society, London, Special Publications, 143. 315-334.
- Tamburini, A., Bianchi, M., Giannico, C., Novali, F. Retrieving surface deformation by PSInSARTM technology: A powerful tool in reservoir monitoring. Int. J. Greenhouse Gas Control 2010, 4, pp. 928–937.
- Teatini, P., Castelletto, N., Ferronato, M., Gambolati, G., Janna, C., Cairo, E., Marzorati, D., Colombo, D., Ferretti, A., Bagliani, A., Bottazzi, F. Geomechanical response to seasonal gas storage in depleted reservoirs: A case study in the Po River basin, Italy. J. geophys. Res. 2011, 116, F02002, doi:10.1029/2010JF001793.

- Thiemeyer, N. (2015): Microfabrics and deformation mechanisms of Gorleben rock salt. Dissertation, Johann Wolfgang-Goethe Universität, Frankfurt am Main.
- Tian J, Wang Y, Dong X (2010) Methanoculleus hydrogenitrophicus sp. nov., a methanogenic archaeon isolated from wetland soil. Int J Syst Evol Microbiol 60:2165–2169
- Tingay, M., B. Müller, J. Reinecker, O. Heidbach, F. Wenzel, and P. Fleckenstein (2005): Understanding tectonic stress in the oil patch: The World Stress Map Project. The Leading Edge, 24, 1276-1282, doi:10.1190/1.2149653
- Tobien, H. (1958): Das Alter der Eruptionen am Limberg (Kaiserstuhl). Z. dt geol. Ges., 110 (1); 4-5 Hannover.
- TRE-Altamira, https://site.tre-altamira.com/insar/
- Valdez B, Schorr M, Quintero M, Carrillo M, Zlatev R, Stoytcheva M, Dios Ocampo J de (2009) Corrosion and scaling at Cerro Prieto geothermal field. Anti-Corrosion Meth & Material 56:28–34. https://doi.org/10.1108/00035590910923437
- Vasco, D.W., Ferretti, A., Novali. Estimating permeability from quasi-static deformation: temporal variations and arrival-time inversion. Geophysics 2008, 73, O37–O52.
- Vasco, D.W., Ferretti, A., Novali. Reservoir monitoring and characterization using satellite geodetic data: Interferometric Synthetic Aperture Radar observations from the Krechba field, Algeria. Geophysics 2008, 73, WA113-WA122.
- Vasco, D.W., Rucci, A., Ferretti, A., Novali, F., Bissell, R., Ringrose, P., Mathieson, A., Wright, I. Satellitebased measurements of surface deformation reveal fluid flow associated with the geological storage of carbon dioxide. Geophys. Res. Lett. 2010, 37, pp. 1–5.
- Velasco, V., Sanchez, C., Papoutsis, I., Antoniadi, S., Kontoes, C., Aifantopoulou, D., Paralykidis, S. Ground deformation mapping and monitoring of salt mines using InSAR technology, Solution Mining Research Institute Fall 2017 Technical Conference, Münster, Germany, 25-26 September 2017.
- Verde, S., Reale, D., Pauciullo, A., Fornaro, G. Improved Small Baseline processing by means of CAESAR eigen-interferograms decomposition. J. Photogramm. Remote Sens. 2018, 139, pp. 1-13.
- Videla HA, Herrera LK (2005) Microbiologically influenced corrosion: looking to the future. Int Microbiol 8:169–180
- Wagner, G.A. (1976): Spaltspurendatierungen an Apatitit und Titanit aus den Subvulkaniten des Kaiserstuhls. N. Jb. Mineral. Mh., 389-393, Stuttgart.
- Wang, Y., Zhu, X. Robust Estimators for Multipass SAR Interferometry. Inst. Electr. Electron. Eng. Trans. Geosci. Remote Sens. 2016, 54, pp. 968-980.
- Warren, J. K. Evaporites: sediments, resources and hydrocarbons 2006, Springer, Berlin Heidelberg, 937–944.
- Warren, J.K. (2016): Evaporites: A Compendium (ISBN 978-3-319-13511-3). Springer, Berlin (1854 pp.)
- Welch SA, McPhail DC (2003) Mobility of major and trace elements during biologically mediated weathering of granite. In: Roach I. C. ed (ed) CRC LEME, pp 437–440
- Westphal A, Eichinger F, Eichinger L, Würdemann H (2019) Change in the microbial community of saline geothermal fluids amended with a scaling inhibitor: effects of heat extraction and nitrate dosage. Extremophiles
- Whitman WB, Coleman DC, Wiebe WJ (1998) Prokaryotes: the unseen majority. Proc Natl Acad Sci U S A 95:6578–6583. https://doi.org/10.1073/pnas.95.12.6578
- Wiese B, Zimmer M, Nowak M, Pellizzari L, Pilz P (2013) Well-based hydraulic and geochemical

monitoring of the above zone of the CO2 reservoir at Ketzin, Germany. Environ Earth Sci 70:3709–3726

- Wigand M, Carey JW, Schütt H, Spangenberg E, Erzinger J (2008) Geochemical effects of CO2 sequestration in sandstones under simulated in situ conditions of deep saline aquifers. Appl Geochem 23:2735–2745
- Wilms, Reinhard; Sass, Henrik; Köpke, Beate; Köster, Jürgen; Cypionka, Heribert; Engelen, Bert (2006): Specific bacterial, archaeal, and eukaryotic communities in tidal-flat sediments along a vertical profile of several meters. In: Applied and environmental microbiology 72 (4), S. 2756–2764. DOI: 10.1128/AEM.72.4.2756-2764.2006.
- Wilms, Reinhard; Sass, Henrik; Köpke, Beate; Cypionka, Heribert; Engelen, Bert (2007): Methane and sulfate profiles within the subsurface of a tidal flat are reflected by the distribution of sulfate-reducing bacteria and methanogenic archaea. In: FEMS microbiology ecology 59 (3), S. 611–621. DOI: 10.1111/j.1574-6941.2006.00225.x.
- Wimmenauer, W. (1952): Petrographische Untersuchungen über das Ankaratrit-Vorkommen im Kalisalzlager Buggingen in Baden Mitt.bl. bad. Geol Landesantalt, 1951, (S117-128, Freiburg i. Br.
- Wimpenny J, Manz W, Szewzyk U (2000) Heterogeneity in biofilms. FEMS Microbiol Rev 24:661–671
- Würdemann H, Möller F, Kühn M, Heidug W, Christensen NP, Borm G, Schilling FR (2010) CO2SINK— From site characterisation and risk assessment to monitoring and verification: One year of operational experience with the field laboratory for CO2 storage at Ketzin, Germany. Int J Greenh Gas Con 4:938–951
- Würdemann H, Westphal A, Lerm S, Kleyböcker A, Teitz S, Kasina M, Miethling-Graff R, Seibt A, Wolfgramm M (2014) Influence of Microbial Processes on the Operational Reliability in a Geothermal Heat Store – Results of Long-term Monitoring at a Full Scale Plant and First Studies in a Bypass System. Energy Procedia 59:412–417
- Würdemann, H., Westphal, A., Kleyböcker, A., Miethling-Graff, R., Teitz, S., Kasina, M., Seibt, A., Wolfgramm, M., Eichinger, F., and Lerm, S. (2016): Störungen des Betriebs geothermischer Anlagen durch mikrobielle Stoffwechselprozesse und Erfolg von Gegenmaßnahmen, Grundwasser, 21, 93–106, doi:10.1007/s00767-016-0324-1.
- Xiao, T., McPherson, B., Bordelon, A., Viswanathan, H., Dai, Z., Tian, H., Esser, R., Jia, W., Carey, W., 2017. Quantification of co2-cementrock interactions at the well-caprock-reservoir interface and implications for geological co2 storage. International Journal of Greenhouse Gas Control 63, 126– 140.
- Xu, R., Wojtanowicz, A.K., 2011. Diagnosis of sustained casing pressure from bleed-off/buildup testing patterns. SPE Production and Operations Symposium. Society of Petroleum Engineers.
- Zettlitzer, M., Moeller, F., Morozova, D., Lokay, P., Würdemann, H. and the CO2SINK Group (2010). "Re-Establishment of proper injectivity of the CO2-injection well Ketzin-201." International Journal of Greenhouse Gas Control. 4 (6). doi: 10.1016/j.ijggc.2010.05.006.
- Zhilina TN, Zavarzina DG, Kevbrin VV, Kolganova TV (2013) Methanocalculus natronophilus sp. nov., a new alkaliphilic hydrogenotrophic methanogenic archaeon from a soda lake, and proposal of the new family Methanocalculaceae. Microbiology 82:698–706. https://doi.org/10.1134/S0026261713060131
- Ziegler, M. O. (2018a): Manual of the Matlab Script FAST Calibration v1.0. 19 pp. doi:10.2312/wsm.2018.003
- Ziegler, M. O. (2018b): Matlab Script FAST Calibration v1.0. doi:10.5880/WSM.2018.003
- Ziegler, M. O., and O. Heidbach (2020a): The 3D stress state from geomechanical-numerical modelling

and its uncertainties: a case study in the Bavarian Molasse Basin. Geothermal Energy, 8(1), doi:10.1186/s40517-020-00162-z

- Ziegler, M. O., and O. Heidbach (2020b): Modelled stress state in the Bavarian Molasse Basin with quantified uncertainties. edited, GFZ Data Services, Potsdam, doi:10.5880/wsm.2020.003
- Ziegler, M. O., M. Ziebarth, and K. Reiter (2019a): Manual of the Python Script Apple PY v1.0. WSM Technical Report 19-01, 22 pp. doi:10.2312/wsm.2019.001
- Ziegler, M. O., M. Ziebarth, and K. Reiter (2019b): Python Script Apple PY v1.0. doi:10.5580/wsm.2019.001

Zinder SH (1993) Physiological ecology of methanogens. In: Methanogenesis. Springer, pp 128–206

7 Anlagen:

Anlage 1: Weitere Informationen zu: Laborexperimente zu Änderungen poroelastischer Eigenschaften von Poren-Speicherund Barriereformationen unter zyklischer Belastung

7.1.1 Experimentelle Ausrüstung und Vorgehensweise

Die experimentelle Prozedur bestand aus drei unterschiedlichen, nacheinander ausgeführten Testtypen. Auf einen sog. CPV-Test folgt ein Depletiontest, der seinerseits von einem Aging-Test gefolgt wird. Anschließend wird nach dem Aging ein weiterer CPV- und ein weiterer Depletion-Test durchgeführt.

Vier Proben des Reservoirsandsteins (S01 bis S04) sowie zwei Proben des Deckschichtmergels (M01 und M02) wurden getestet. Die getesteten Probenzylinder haben einen Durchmesser von 30 mm. Die Länge der Proben variiert von 45 mm (Mergelproben M01 und M02) bis zu 60 mm (Sandsteinproben S01 bis S04). Probe S02 wurde zweimal unter unterschiedlichen Deformationsbedingungen getestet (dann zur Unterscheidung als S02a und S02b bezeichnet). Im Fall von Probe S03 musste der zweite Depletiontest aus technischen Gründen wegfallen. Bei den Deckschicht-Mergelproben wurde auf die Depletiontests ganz verzichtet und nur zwei CPV-Tests unterbrochen von einem Aging-Test durchgeführt. Der Depletiontest wurde weggelassen, weil die dazu notwendige vollständige Equilibrierung des Porenfluidvolumens bei der sehr geringen Porosität und Permeabilität des Mergels nur durch sehr lange Versuchszeiten im Bereich mehrerer Wochen zu erreichen gewesen wäre – ein Unterfangen, das in einem Industrieunternehmen wie dem Gesteinslabor nicht durchführbar war. Für den deutlich poröseren und permeableren Reservoirsandstein hingegen war die Einstellung eines stabilen Porenfluidvolumens pro Druckstufe problemlos möglich.

7.1.1.1 Laborausstattung

Die Triaxialversuche wurden mit einer digital geregelten, servohydraulischen Prüfmaschine durchgeführt. Die Maschine hat einen Kraftmessbereich bis 600 kN und erfüllt die Anforderungen der Kalibrierklasse 1. Der Zweikanal-Controller regelte zudem zeitgleich einen elektromechanischen Druckerzeuger, der in der Lage ist, Drücke bis zu 200 MPa zu generieren (mit einer Genauigkeit, die der Kalibrierklasse 0,5 entspricht).

Für die Versuche wurden die Proben in eine Triaxialzelle mit austauschbaren Stempeln eingebaut, die von der GL Test Systems GmbH hergestellt wurde (Abbildung 107). Die Stempel sind perforiert, um Messungen unter drainierten Bedingungen durchführen zu können. Die absolute axiale und radiale Deformation wurden direkt im Druckbehälter gemessen. Dabei kamen zum Einsatz:

- für die Axialdeformation drei LVDTs (Linear Variable Differential Transformers = Differentialtransformatoren);
- für die Radialdeformation (als Umfangsänderung Probenmitte) in ein Umfangsdehnungssensor in Form einer Messkette mit angeschlossenem Dehnungsmessstreifen.

Auch die Axiallast wurde mit einer innenliegenden Kraftmessdose aufgezeichnet. Die innenliegende Deformations- und Kraftaufzeichnung sorgten dafür, dass nur die Bedingungen gemessen wurden, die die Proben direkt betrafen und nicht die Deformations- und Spannungsbedingungen an der Maschine: die Rahmendeformation und Reibungseffekte sollten ausgeschlossen werden. Zudem wurde eine hydrostatische Druckplatte verwendet. Die Probenkörper befanden sich während der Experimente in einem Kunststoff-Probenschlauch. Alle wichtigen Versuchsparameter wurden automatisch und in geeigneten Aufzeichnungsintervallen zwischen 1 und 10 Sekunden erfasst.



Abbildung 107: Triaxial-Aufbau mit drei LVDTs und Schema des Probeneinbaues mit perforierten Stempeln zum Einbringen des Porenfluids und zum Testen unter drainierten Bedingungen (Mitte). Der komplette Druckbehälter ist links zu sehen, das Spannungsfeld um die Probe rechts.

Der Porendruck wurde mit einer Quizix Q5200-Hochpräzisions-Kolbenpumpe erzeugt. Es handelt sich um eine elektromechanische Hochdruckpumpe. Alle benetzbaren Teile bestehen aus Hastelloy[®] C-276-Stahl, so dass mit korrosiven, salinaren Formationswässern gearbeitet werden kann. Um Temperatatureffekte auszuschließen, befand sich die Quizix-Pumpe bei den Versuchen (auch bei Flüssigkeitspermeabilitätstests) in einer regelbaren Klimakammer. Das benutzte Porenfluid entsprach in seiner Zusammensetzung dem Formationswasser des untersuchten Reservoirs mit 17 g NaCl pro Liter H₂O.

7.1.1.2 Verlauf der CPV-Tests

Beim CPV-Versuch wurde nach einer ausführlichen Equilibrierungsphase unter hydrostatischen Bedingungen die isotrope Porenraumkompressibilität c_{pc} über das verdrängte Porenfluidvolumen mit zunehmendem Umschließungsdruck ermittelt. Die Druckstufen betrugen: 5, 10, 15, 20 und 26,3 MPa bei einem Porendruck von 0,5 MPa (Abbildung 108 a für einen Reservoir-CPV-Test und Abbildung 109 a für einen Deckschicht-CPV-Test). Dies entsprach in der letzten Druckstufe einem effektiven mittleren Druck von 25,8 MPa, wie er im untersuchten Reservoir besteht. Zusätzlich wurde auf der Grundlage von Axial- und Radialstrainmessungen die Gesamtkompressibilität *c*_{bc} unter isotropen, hydrostatischen Bedingungen berechnet. Im Fall der Deckschichtproben konnte nur die Gesamtkompressibilität gemessen werden, da die Ermittlung der Porenraumkompressibilität über das verdrängte Porenfluidvolumen bei der extrem niedrigen Permeabilität Testdauern über Monate erfordert.

7.1.1.3 Verlauf der Depletiontests

Auf den CPV-Test folgte der Depletiontest, bei dem mit Veränderungen im Umschließungsdruck (max. 37,5 MPa), der Axiallast (max. 42 MPa) und des Porendrucks (max. 16,3 MPa), diese poroelastischen Kenngrößen berechnet wurden:

- 1. die Kornkompressibilität c_g (sie wurde gleich zu Beginn des Tests bestimmt mit gleichzeitig ansteigendem P_p , S_1 und S_3);
- 2. die Gesamtkompressibilität bei sich veränderndem allseitigem Umschließungsdruck und konstantem Porendruck c_{bc} (ähnlich wie im CPV-Test; aus den ersten beiden Kompressibilitäten kann der Biotkoeffizient α berechnet werden als $\alpha = 1 \frac{c_g}{c_{bc}}$),
- 3. die Gesamtkompressibilität bei konstantem allseitigem Umschließungsdruck *c*_{bp} (und sich änderndem Porendruck; der Porendruck wurde kurzzeitig von 16,3 MPa auf 20 MPa erhöht),



Abbildung 108: Typische Messzyklen für den Reservoirsandstein: a) CPV-Test, b) Depletiontest, c) Aging. Die drei Testtypen wurden kombiniert.

- 4. die uniaxiale Porenraumkompressibilität (bei sich veränderndem Porendruck) c_{pp} . Dazu wurde der Porendruck von 16,3 MPa auf 1 MPa abgesenkt bei gleichzeitig konstanter Axiallast. Zur Simulation des Entleerens des Reservoirs und der damit verbundenen Kompaktion wurde keine radiale Deformation zugelassen (bei gleichzeitig "frei schwebendem" und dem Porendruck folgendem radialem Umschließungsdruck S_3). Folglich wurde die komplette Deformation durch den Axial-strain abgebildet. Danach wurde dann der Porendruck von 1 MPa auf 16,3 MPa angehoben, bei konstanter Axiallast S₁ von 42 MPa und nach wie vor "frei schwebendem" S₃, wodurch der Radialstrain $\varepsilon_r = 0$ gehalten wurde und die gesamte Deformation durch den Axialstrain ε_a abgebildet wurde. Dieser Versuchsablauf galt für die Reservoirsandsteintests S01, S02b und S04. Im Fall der Tests S02a und S03 wurde S₁ gleichzeitig mit S₃ abgesenkt und wieder angehoben.
- 5. die Entleerungskonstante γ (als Verhältnis aus S_3 and Pp im gleichen Versuchsabschnitt wie c_{pp})
- 6. der Kompaktionskoeffizient c_m (Axialdeformation als Funktion des sich ändernden Porendruckes P_p wurde im gleichen Versuchsabschnitt wie c_{pp} und γ bestimmt)

Die oben genannten Spannungsdaten beruhen auf den, in der Einführung erwähnten RACOS^{*}-Untersuchungen. Der Depletiontest wurde nur für den Reservoirsandstein durchgeführt, da die Porenfluidequilibrierung im Deckschichtmergel aufgrund seiner geringen Porosität und Permeabilität zu lange gedauert hätte, um in einem angemessenen Zeitrahmen zu Ergebnissen zu kommen. Der vollständige Ablauf eines Depletiontests am Reservoirsandstein ist in Abbildung 108b exemplarisch dargestellt.

7.1.1.4 Setup der Agingzyklen

Nach dem ersten CPV-Test und dem ersten Depletiontest wurden sog. Agingzyklen durchgeführt. Sie entsprachen im Wesentlichen einer mehrmaligen Wiederholung des letzten Teils des Depletiontests (siehe Punkte 4-6 in "Verlauf der Depletiontests"). Dabei wurde der Porendruck von 16,3 MPa auf 1 MPa reduziert und anschließend wieder auf den Ausgangswert erhöht (was dem Entleeren und Wiederbefüllen eines Porenspeichers entspricht). Gleichzeitig wurde die Radialdeformation verhindert und alle Deformation über den Axialstrain aufgenommen (Abbildung 108c). Die Axiallast S_1 blieb über die gesamte Aging-Sequenz hinweg konstant bei 42 MPa (etwas unterschiedlich für die Proben S02a und S03; siehe Abschnitte 3.2 und 3.3). Im Fall der Reservoirproben wurden 21 Entleerungs-/Wiederbefüllungs-Zyklen durchlaufen (Abbildung 108c). Dies entspricht unter den aktuellen Rahmenbedingungen 21 Jahren Speichernutzung.

Für die Deckschichtproben wurden je 18 Entlastungs-/Wiederbelastungszyklen ausgeführt (Abbildung 109). Da der Mergel sehr dicht ist, wäre es sehr langwierig und schwierig gewesen, die Agingzyklen über den Porendruck zu kontrollieren. Wie schon weiter vorne und wiederholt erwähnt, stellt sich die Equilibrierung des Porenfluiddruckes und des Fluidflusses in einem niedrigpermeablen Gestein ohne nennenswerte Porosität in überschaubaren Zeiträumen nicht hinreichend ein. Daher wurde ein alternativer Aging-Ansatz gewählt und der lithostatische Umschließungsdruck (S_1 und S_3) mit dem gleichen Zeitgradienten gesenkt und gehoben, wie er in den Aging-Sequenzen für die Proben aus dem Reservoirsandstein beobachtet worden war. Der Porendruck wurde hierbei nicht weiter kontrolliert und als "frei schwebend" betrachtet. Er folgte – verzögert und ohne Gleichgewicht zu erreichen - S_1 und S_3 . Dementsprechend wurde die Radialdeformation bei den Agingzyklen der Deckschichtproben – im Unterschied zum Reservoirsandstein – nicht bei Null gehalten.

Nach dem Aging wurde – im Fall des Reservoirsandsteins – ein weiterer CPV- und ein zusätzlicher Depletiontest durchgeführt. Für den Mergel wurden keine Depletiontests durchgeführt.



Abbildung 109: Typische Messzyklen für den Deckschicht-Mergel: a) CPV-Test, b) Aging.

7.1.1.5 Flüssigkeitspermeabilitätstests und kapillarer Sperrdruck

Die Flüssigleitspermeabilität und der kapillare Sperrdruck werden im Gesteinslabor mit einer für diesen Zweck optimierten Anlage gemessen. Um Umgebungseinflüsse auf die Messung zu minimieren, ist diese Anlage in einem temperaturkonstanten Raum aufgebaut.

Die Anlage besteht aus vier Hauptkomponenten:

- <u>Druckbehälter</u> bis 40 MPa mit Probenhalter und Fluidanschlüssen. Zur rationellen Versuchsgestaltung stehen vier Druckbehälter zur Verfügung, die ohne Druckverlust ausgetauscht werden können. Dies ermöglicht die Entkopplung der zeitaufwändigen Aufsättigungsphase von der eigentlichen Bestimmung des Sperrdrucks.
- 2. <u>Computergesteuerte Doppelzylinder-Präzisionsspindelpumpe Quizix Q5200</u> (70 MPa, Hub 7 cm³).

Alle benetzten Teile sind in Hastelloy (2.4617) oder Siliziumkarbid ausgeführt. Somit kann die gesamte Anlage direkt mit salinaren Lösungen betrieben werden. Zur Regelung des Gaseingangsdrucks wird ein Medientrenner eingesetzt.

- unterbrechungsfreien, 3. Ventilarray zur volumenkonstanten Umschaltung der unterschiedlichen Betriebsphasen. Die Ventile werden von außerhalb des temperaturgeregelten Raumes angesteuert, um während der Messphase keine Temperaturschwankungen im Messraum zu verursachen.
- 4. <u>Manteldruckerzeugung</u>

Der Manteldruck wird mit einer hydraulischen Kolbenpumpe bis 70 MPa bereitgestellt. Über einen groß dimensionierten Druckspeicher wird der Druck konstant gehalten.

Die gesamte Anlage ist darauf optimiert, sehr kleine Fluidumsätze präzise zu registrieren. Die Anzahl der Verschraubungspunkte wurde auf ein absolut nötiges Minimum reduziert, um die Orte möglicher Leckagen klein zu halten. Sämtliche statischen Dichtungen sind metallisch ausgeführt, um diffusive Verluste zu verhindern. Außer dem PC und den Messwertanzeigen sind alle Komponenten im temperaturkonstanten Bereich aufgebaut. Die Temperatur kann bis 60°C auf 0,1°C genau eingestellt werden. Nach dem Probeneinbau ist die Anlage komplett fernsteuerbar.

Die Messprozedur des kapillaren Sperrdrucks gliedert sich in mehrere Phasen:

- 1. Herstellen der vollständigen Fluidsättigung
- 2. Bestimmung der stationären Flüssigkeitspermeabilität
- 3. Bestimmung des kapillaren Sperrdrucks
- 4. Aging-Zyklen: 20-stufig und vergleichbar dem Aging-Zykus zwischen den CPV-Tests am Deckschicht-Mergel
- 5. und 6. Wiederholung der Flüssigkeitspermeabilitätstest und der Bestimmung des kapillaren Sperrdrucks nach dem Aging

Im Folgenden werden die ersten drei Schritte der Messprozedur im Detail beschrieben.

7.1.1.6 Herstellen der vollständigen Fluidsättigung

Da die Proben für den kapillaren Sperrdruck in der Regel sehr kleine Permeabilitäten (~10⁻²¹ m²) aufweisen, ist die Aufsättigungsphase sehr zeitintensiv. Aus diesem Grund wird dieser Versuchsabschnitt ohne Verwendung der Präzisionsspindelpumpe durchgeführt. In einer speziell für diesen Zweck konstruierten Flutanlage werden die Proben in den gleichen Druckbehältern, in denen später die Versuche durchgeführt werden, unter *in situ*-Bedingungen mit Formationswasser aufgesättigt. Ist die Wassersättigung vollständig abgeschlossen, wird der komplett bestückte Druckbehälter ohne Druckverlust an der Messapparatur angedockt. Dies ist wichtig, damit die Probe nicht unkontrollierten Bedingungen ausgesetzt wird und um die anschließende Konsolidierungsphase in der Sperrdruckmessapparatur zu verkürzen. In einer Konsolidierungsphase wird die Probe anschließend an die für den Test notwendigen vorgegebenen Druckbedingungen angepasst. Dieser

Vorgang kann mehrere Tage dauern. Die Konsolidierung wird durch eine Equilibrierung sämtlicher Parameter angezeigt.

7.1.1.7 Bestimmung der stationären Flüssigkeitspermeabilität

Zur Bestimmung der stationären Wasserpermeabilität wird über der Probe ein Differenzdruck angelegt. Aus dem resultierenden Fluidfluss *Q* wird nach dem Gesetz von Darcy (Darcy 1856) die Permeabilität berechnet (Abbildung 110). Auch hier ist mit einigen Tagen bis zu mehreren Wochen Wartezeit zu rechnen, bis sich in der Probe ein stationärer Druckgradient eingestellt hat. Dieser Zustand wird ebenfalls durch die Equilibrierung sämtlicher Messparameter angezeigt.



Abbildung 110: Verlauf einer Flüssigkeitspermeabilitätsmessung im Sperrdruckversuch.

7.1.1.8 Bestimmung des Kapillaren Sperrdrucks

Für die Bestimmung des kapillaren Sperrdrucks muss die Probe wieder in den hydrostatischen Zustand transferiert werden. Der Differenzdruck der Permeabilitätsmessung wird abgebaut und die Probe erneut auf dem Niveau des initialen Porendrucks equilibriert.

Die eigentliche Messung des Sperrdrucks basiert auf der "modifizierten kontinuierlichen Injektionsmethode" nach Meyn (1999). Hierbei wird unter Beibehaltung des Drucks zunächst das Porenwasser einseitig von der Probe entfernt und durch Stickstoff ersetzt. Es folgt eine kurze Equilibrierungsphase. Um einen kontinuierlich steigenden Differenzdruck über der Probe aufzubauen, wird ausgangsseitig der Druck langsam abgesenkt. Dabei muss die Absenkrate umso kleiner gewählt werden, je kleiner die Permeabilität der Probe ist. An den Tonsteinen erfolgte diese Druckabsenkung über den Zeitraum einer Woche.

Diese sehr langsame Druckrampe ermöglicht überschüssigem Porenwasser aus der gesamten Probe abzufließen. Dieses zu drainierende Wasser stammt aus vier Quellen:

- 1. Drainage des Restwassers von der gasbeaufschlagten Probenseite. Dies tritt lediglich am Anfang des Differenzdruckaufbaus auf.
- 2. Ausdehnung des Porenwassers in Folge der Wasserkompressibilität.
- 3. Einengung des Porenraumes (compressibility of pore volume), hervorgerufen durch die größer werdende effektive Belastung der Probe.
- 4. Deformation der Poreneintrittsmenisken in den Porenraum.

Aus den Punkten 1 und 4 ist ersichtlich, dass der registrierte Gasfluss auch vor Überschreiten des Sperrdrucks an keiner Stelle gleich null ist. Hinzu kommen noch diffusive Verluste durch Lösung des Gases im Porenwasser.





Ist der kapillare Sperrdruck überschritten, steigt der Gasfluss in der Probe stark an (hellgrüne Linie in Abbildung 111). An der Ausgangsseite tritt zeitlich verzögert ebenfalls eine Erhöhung der Fließrate ein (hellblaue Linie in Abbildung 111). Bei hinreichend kleinem Druckabsenkungsgradient kann aus dem Differenzdruck über der Probe direkt der Sperrdruck abgelesen werden.

Anlage 2: Weitere Informationen zu: Dichtigkeit der Speicherinfrastruktur unter zyklischer Belastung -Technikumsexperimente und Modellierung

7.2 Details zum Technikumsexperiment mit dem Bohrlochsimulator Typ I

Die Technikumsgroßversuche wurden am KIT entwickelt und durchgeführt (Arbeitsgruppe Technische Petrophysik des KIT – KIT-TP). Der Bohrlochsimulator Typ I (Abbildung 46, Abbildung 47) eignet sich zur Untersuchung zementverfüllter Stahlcasings hinsichtlich ihrer Durchlässigkeitsänderung bei zyklischen Druck- und Temperaturschwankungen. Die Anlage besteht im Wesentlichen aus einer oberen Kammer, einer unteren Kammer und einem zementverfüllten Stahlcasing zwischen diesen Kammern. Die Einzelteile der Kammern werden durch Gummidichtungen abgedichtet, während sich zwischen den Kammern und dem Rohr jeweils eine ringförmige PTFE-Stopfdichtung befindet (Schilling et al. 2015; 2016).

In der Anlage können über Stickstoff Drücke von bis zu 100 bar aufgebaut werden. Hierzu strömt Stickstoff mit ca. 10 bar aus einem 50 l fassenden Zylinder in einen Druckverstärker. Dieser komprimiert das Gas und leitet es über ein Rückschlagventil in die untere Kammer der Anlage, bis der gewünschte Druck (maximal 100 bar) erreicht ist. Bei voller Leistung können ca. 6 bar/min aufgebaut werden, die Geschwindigkeit kann jedoch auf bis zu 0,1 bar/min reduziert werden. Die untere Kammer kann über eine Hochdruckleitung mit der oberen Kammer verbunden werden, sodass die Drücke in beiden Kammern (Autoklaven) gleichzeitig aufgebaut werden können. Über ein Handventil lässt sich diese Verbindung trennen. Beide Kammern und das Casing sind von Heizmatten umgeben (Abbildung 47), die Temperaturen in den Autoklaven und im zementierten Rohr von bis zu 100 °C ermöglichen. Das System ist zusätzlich mit Isolationselementen ausgestattet, um die Temperaturkonstanz zu erhöhen und Wärmeverluste der Anlage zu minimieren. Für jede Kammer werden jeweils Druck und Temperatur gemessen und automatisch aufgezeichnet.

Der Aufbau dient in erster Linie zur Simulation bereits verfüllter Bohrungen z.B. in einer ehemaligen Gaslagerstätte, die nun als Gasspeicher genutzt werden soll. Ehemalige Förderbohrungen werden verschlossen und müssen Druck- und Temperaturschwankungen standhalten, wenn über weitere Bohrungen Gas injiziert oder extrahiert wird. Auch wird hierbei der Verbund Stahlrohr-Zement unter zyklischen Belastungen untersucht, die beim Betrieb eines Gasspeichers durch die Ein- und Ausspeicherung auftreten.

Um Druckschwankungen im Gasspeicher zu simulieren, kann Druck in der Anlage abgelassen und wiederaufgebaut werden. Analog dazu kann die Temperatur über die Temperaturregelung der Heizmatten variiert werden. Eine Steuerung der Temperatur ist auf 1 °C genau regelbar und für jede der 7 Heizmatten individuell einstellbar um i.d.R. geringe bzw. vorgegebene Temperaturgradienten einstellen zu können.

7.2.1 Versuchsdurchführung

Die durchgeführten Versuchsreihen bestehen jeweils aus 4 Phasen:

- 1. Zementation des Casings und Aushärten des Zements
- Versuche zur Bestimmung von Mineralogie (Carbonatgehalt einzeln), Korndichte, Wassergehalt, Porenanteil, Porosität und Permeabilität am Zementstein an Initialproben, zeitgleich zum Einbau des Casings
- 3. Versuche zur Durchlässigkeit des Zement-Stahl-Verbundes nach Druck- und/oder Temperaturschwankungen in der Versuchsanlage
- 4. Versuche analog zu Phase 2 an Blindproben und dem Zementstein im Casing, unmittelbar nach dem Ausbau des Casings

Jede Versuchsreihe beginnt mit der Zementation des Casings. Hierzu wurden stets am Vortag 4 x 25 l deionisiertes Wasser in Kunststoffeimer abgefüllt, mit Deckeln oder Folie vor Verunreinigung geschützt und neben den Zement gestellt, damit beide Komponenten beim Anmischvorgang gleich temperiert sind. Beim verwendeten Zement handelt es sich in allen Fällen um Dyckerhoff Class G Tiefbohrzement aus derselben Charge. Danach erfolgte das Einführen des Casings in die mit einem Moosgummiring abgedichtete Zementationsvorrichtung und die Fixierung des Casings zur Zementation im gleichen Raum, in dem auch der Zement und das Wasser gelagert wurden.

Am jeweils nächsten Tag wurden 66,2 l Wasser in den Kolloidalmischer Gertec IS-38-E gefüllt. Es wurde stets der gleiche Zementmischer verwendet. Unmittelbar im Anschluss erfolgte das Einschalten des Mischwerks und die Zugabe von 150 kg Zement innerhalb von ca. 2 min. Sofort nach Zugabe des Zements begann die Nachmischzeit von 5 min. Es wurde für alle Versuchsreihen die gleiche Menge mit einem w/z-Wert von 0,44 angemischt. Danach wurde etwa 30 s lang das Casingvolumen von ca. 25 l von unten nach oben befüllt. Dazu wurde der Schlauch an das untere Ende des Casings geführt, langsam Zementsuspension eingefüllt und der Schlauch mit steigendem Pegel so nach oben gezogen, dass sich die Öffnung stets etwas unterhalb des Pegels befand. Dieses Vorgehen dient dazu, die Anzahl eingeschlossener Luftblasen zu minimieren. Das Casing wurde nicht mehr bewegt, bis der Zement ausgehärtet war. Um zur Vergleichbarkeit eine möglichst 100 %ige Luftfeuchtigkeit bei der Aushärtung sicherzustellen, wurde die Öffnung des Casings daraufhin mit Kunststofffolie und Klebeband verschlossen.

Anschließend wurden Behälter für die Blind- und Initialproben befüllt, indem Zementsuspension in 5 l fassenden Eimer mit Ausgießer gefüllt und von dort aus vorsichtig in die Probenbehälter gegossen wurde. Bei den Probenbehältern handelt es sich um 10 cm lange Kanalgrundrohre, die mit dichtender "aqua-fermit"-Knetmasse auf Plexiglasplatten befestigt sind. Dadurch ergeben sich zylindrische Probenkörper, deren Höhe und Durchmesser ca. 10 cm betragen. Zur Lagerung der Blind- und Initialproben bei vergleichbaren Bedingungen wurden die Proben in Kunststoffbehälter gestellt und der Boden mit etwas deionisiertem Wasser bedeckt, jedoch so, dass kein direkter Kontakt zwischen Wasser und Proben bestand. Die Behälter wurden mittels Deckel und Klebeband luftdicht verschlossen, um auch hier eine hohe Luftfeuchtigkeit zu gewährleisten. Diese wurde angestrebt, da es in Bohrlöchern in der Tiefe nicht zu Verdunstungsvorgängen kommen kann.

Parallel wurden bei der ersten Zementation Suspensionsdichte, Ausbreitmaß und Luftporengehalt der Zementsuspension bestimmt.

Es wurden insgesamt 4 Casings untersucht, die sich in folgenden Punkten unterscheiden:

Casing 0: Hierbei handelt es sich um ein über 3 Jahre altes Casing aus dem COBRA-Projekt, das bereits druck- und temperaturtechnisch beansprucht war. Bei den vorherigen Versuchen wurden CO₂ und salinare Fluide statt Stickstoff verwendet. Diese Versuche wurden auch genutzt, um den Einfluss chemischer Reaktionen auf die Zementalteration zu untersuchen.

- Casing 1: Der Zement härtete 6 Monate aus.
- Casing 2: Der Zement härtete 28 Tage aus.
- Casing 3: Der Zement härtete 28 Tage aus. Die Zunderschicht auf der Innenseite des Casing wurde durch Sandstrahlen entfernt.

Nach der genannten Aushärtezeit wurde das Casing in die Anlage eingebaut und die Versuchsreihe am selben Tag gestartet. Parallel dazu erfolgten die genannten Zementversuche an den gleichalten Initialproben.

Innerhalb einer Versuchsreihe (also verschiedener Durchlässigkeitsversuche an einem Casing) wurden definierte Druck- und/oder Temperaturschwankungen vorgegeben. Eine Temperaturschwankung

bedeutet in diesem Zusammenhang, dass alle Heizmatten (üblicherweise auf 70 °C eingestellt) ausgeschaltet wurden (maximale Abkühlrate, Temperaturabnahme durch thermische Eigenschaften des befüllten Rohres vorgegeben). Über die Temperatursensoren in der unteren und oberen Kammer konnte der Abfall der Temperatur verfolgt werden. Bei Temperaturen im Bereich von 30 °C wurden die Heizmatten wieder eingeschaltet. Die einzelnen Temperaturzyklen betrugen ca. 48 Stunden. Bei simulierten Druckschwankungen wurde der Druck gleichzeitig in beiden Kammern durch ein Ablassventil von ca. 60 bar auf atmosphärischen Druck reduziert. Dies geschah über einen Zeitraum mehrerer Stunden, um keine hohen Druckgradienten zwischen dem Porenraum des Zements und den Kammern zu generieren (Vermeidung induzierter hydraulischer Brüche). Der Druckaufbau lief in einer vergleichbaren Zeitspanne ab. Um auch den Einfluss rascher Druckänderungen zu beobachten, können die Experimente genutzt werden, bei denen der Druck innerhalb weniger Minuten ab- und aufgebaut wurde.

Zwischen den Druck- oder Temperaturzyklen konnten Versuche zur Bestimmung der System-Durchlässigkeit durchgeführt werden. Dazu wurde das Ventil zwischen der unteren und oberen Kammer geschlossen. Danach wurde innerhalb von 1-2 Sekunden aus der oberen Kammer etwas Gas entlassen, sodass der Druck in der oberen Kammer um ca. 1-3 bar fiel. Durch die Druckdifferenz zwischen oberer und unterer Kammer strömte Gas aus der unteren Kammer durch das zementierte Stahlcasing in die obere Kammer (als einzige Wegsamkeit). Der Druck in der unteren Kammer sowie die Temperatur sämtlicher Heizmatten wurden konstant gehalten. In der unteren Kammer wurde der Druck annähernd konstant gehalten, indem Gas nachgepumpt wurde. Durch die kontinuierliche Aufzeichnung des Drucks konnte eine Druckanstiegskurve für die obere Kammer erstellt werden. Daraus ließ sich der Druckausgleichsprozess zwischen oberer und unterer Kammer mit definierten Randbedingungen beschreiben. So konnten unterschiedliche Transportprozesse betrachtet werden. 1) Ausgehend von der Annahme, dass der Druckausgleich hauptsächlich über den Ringspalt zwischen Zement und Casing abläuft, konnte auf Basis der Messwerte die Öffnungsweite eines Ringspalts über die Anpassung der Modellergebnisse an Messdaten bestimmt werden. 2) Annahme einer Volumenpermeabilität durch den Zementstein. Über die Anpassung der Modellergebnisse an Messdaten konnte dabei die Permeabilität bei vorgegebener Porosität bestimmt werden. Aus dem Kurvenverlauf ließen sich dabei die unterschiedlichen Transportprozesse unterscheiden (Güte der Anpassung). Versuche zur Durchlässigkeit wurden bei allen Casings bei 60 bar und 70 °C durchgeführt, falls nicht anders vermerkt.

7.2.2 Versuche zu Materialeigenschaften des Zementsteins

Wie beschrieben wurden am Zementstein zu verschiedenen Zeitpunkten ebenfalls Versuche durchgeführt. Im folgenden Abschnitt werden für diese Zeitpunkte folgende Notationen verwendet:

- CZX steht für Cobra Zement X. X bezeichnet hierbei die Nummer des Casings. Gleiche Nummern bedeuten, dass der Zement wie beschrieben in einer Charge angemischt wurde.
- Der Zusatz "Initial" und "Blind" bedeutet, dass es sich um eine Rückstellprobe handelt, der Zementstein war nicht in der Versuchsanlage eingebaut. Der Zusatz "Cobra" bedeutet, dass der Zement aus dem entsprechenden Casing stammt und den Druck- und Temperaturschwankungen der jeweiligen Versuchsreihe ausgesetzt war.
 - Initialproben wurden beim Einbau des Casings gemessen und bilden stellvertretend für den Zementstein im Casing dessen Eigenschaften ab.
 - Cobraproben wurden beim Ausbau des Casings gemessen.
 - Blindproben wurden zeitgleich mit den Cobraproben gemessen. Sie dienen wie der Name verrät als Blindprobe.
 - Da der Ausbau eines Casings meist zeitgleich mit dem Einbau des nächsten Casings erfolgte, wurden normalerweise CZX Cobra, CZX Blind und CZ(X+1) Initial zusammen gemessen.

- Weitere Informationen zur Herstellung der Proben und der Suspension können der Versuchsbeschreibung entnommen werden.
- Für CZ0 existieren keine Werte, da damals keine Rückstellproben angefertigt wurden.

Zur Bestimmung des Mineralgehalts wurden die Zementproben grob zerkleinert, getrocknet, in einer Scheibenschwingmühle gemahlen und röntgendiffraktometrisch untersucht. Die Auswertung erfolgte nach der Rietveld-Methode und liefert die in Tabelle 22 zusammengefassten Ergebnisse.

Tabelle 22: Nach Rietveld-Methode bestimmte Mineralphasen der verschiedenen Zementproben. Bei CZ1 Cobra Belag handelt es sich um eine Probe, die am oberen Ende des Zements von Casing 1 entnommen wurde.

	CZ1 Initial	CZ1 Blind	CZ1 Cobra Belag	CZ1 Cobra	CZ2 Initial	CZ2 Blind	CZ2 Cobra	CZ3 Initial
Mineralphasen	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]
Portlandit Ca(OH) ₂	56,8	55,6	58,4	63,2	59,8	54	45,1	59,8
Ettringit Ca ₆ Al ₂ (SO ₄) ₃ (OH) ₁₂ ·26H ₂ O	4,1	0,5	0,9	0	0	0,5	2,4	0,4
C ₃ S (Alit) Ca ₃ SiO ₅	5,2	5	5,4	2,5	6,1	3,7	5	3,4
C ₂ S (Belit) Ca ₂ SiO ₄	8,4	13,5	2,5	1,2	12,1	2,9	2,4	8,4
Brownmillerit (Aluminatphase)	11,2	11	13,3	12,4	10,5	8,4	7,2	7,7
Hydrogranat	12,1	13	16,5	18,6	9,7	9,7	14,8	7,7
Calcit	2,2	1,5	2,9	2,2	0,7	1,3	0	1,7
Hydrocalumit (AFM)	0	0	0	0	1,1	0	0	0
Amorphe Phasen	19	21	22,4	23,7	21,2	21	23,1	21.5

Da sich Casing 3 zum Zeitpunkt des Verfassens dieses Berichts noch in der Versuchsanlage befindet und weiter untersucht wird, stehen hier die Initialwerte zur Verfügung. Bei CZ1 Cobra Belag wurde an der Oberseite (also dem Ende in der oberen Kammer der Versuchsanlage) des Zements aus Casing 1 eine zusätzliche Probe genommen, da sich dort nach Abschluss der Versuchsreihe Kristalle gebildet hatten (Abbildung 112). Die als Portlandit identifizierten Kristalle bildeten sich, während Casing 1 in der Versuchsanlage eingebaut war. Der Zement unmittelbar unterhalb der neu gebildeten Kristalle wurde für den Fall untersucht, dass hier ein veränderter Mineralbestand vorliegt. Die Zusammensetzung unterscheidet sich allerdings nur leicht von der etwa mittig (also in 1 m Tiefe) genommenen CZ1 Cobra-Probe. Der Portlanditgehalt der CZ1 Cobra-Probe ist im Vergleich zu den anderen Proben leicht erhöht, eventuell fand auch im Inneren der Probe eine späte Kristallisation von Portlandit statt. Der Portlanditgehalt der CZ2 Cobra-Probe ist dagegen ungewöhnlich gering.



Abbildung 112: Neu gebildete Portlandit-Kristalle auf der Oberfläche des Zements aus Casing 1

Alle Proben bestehen hauptsächlich aus Portlandit, amorphen Phasen, Hydrogranat und Brownmillerit, mit leicht wechselnden Anteilen. Klinkerphasen nehmen erwartungsgemäß mit der Zeit ab, sind also in Blind- und Cobraproben weniger häufig als in Initialproben. Lediglich CZ1 Blind hat einen deutlich höheren Gehalt an Belit als die Initialprobe. Hydrogranat ist in Inital- und Blindproben ähnlich präsent und tritt in den Cobraproben dagegen häufiger auf als in den beiden Referenzproben. Während der Versuchsreihe hat sich in beiden Fällen bei der außerhalb der Versuchsanlage gelagerten Probe kein oder kaum neuer Hydrogranat gebildet, im Gegensatz zur Probe in der Versuchsanlage.

Zusätzlich wurde der Carbonatgehalt gesondert nach DIN 18129 bestimmt. Hierfür ergaben sich für die Initialproben Werte von 0,3 – 0,4 Gew. % und für die gealterten Cobra- und Blindproben 0,2 – 0,3 Gew.%. Der Carbonatgehalt nahm also mit der Zeit ab. Zwischen Magnesium- und Calciumcarbonat konnte nicht differenziert werden. Diese Werte sind deutlich niedriger als bei der röntgendiffraktometrischen Bestimmung.

Die Bestimmung der Korndichte erfolgte nach DIN EN ISO 17892-3. Für die Trockendichte wurden DIN 18 125 T1 und T2 herangezogen. Da es sich allerdings nicht um Bodenproben handelt, konnte das Volumen der zylindrischen Proben mit einem Messschieber über die Messung an mehreren Stellen erfasst werden. Der Porenanteil ergibt sich aus Korndichte und Trockendichte.

Korndichte, Trockendichte und Porenanteil liegen für alle Proben nahe beieinander (Tabelle 23), außer für CZ1 Cobra. Da hier eine späte Kristallisation von Portlandit auf der Oberfläche des Zementsteins stattfand, könnte Portlandit ebenfalls im Inneren der Probe kristallisiert sein und so den Porenanteil verringert haben. Da die Dichte von Portlandit mit 2,23 g/cm³ zudem geringer ist als jede gemessene Korndichte könnte dies auch die Verringerung der Korndichte bei CZ1 Cobra erklären. Eine Verringerung des Porenanteils bewirkt zudem eine Erhöhung der Trockendichte, die ebenfalls bei CZ1 Cobra gemessen wurde.

Außerdem ist CZ1 im Casing um ca. 6,5 % während der Aushärtung geschrumpft. Casing 2 schrumpfte lediglich um 0,5 %. Das Volumen von CZ1 Cobra wurde also verringert, während keine Masse verloren ging. Dies führt ebenfalls zu einer Erhöhung der Trockendichte. Welcher der beiden Effekte dominiert ist nicht geklärt.

Tabelle 23: Dichte und Porenanteil der Zementsteinproben.

		Trockendichte	Korndichte	Porenanteil	
		[g/cm³]	[g/cm³]	[%]	
	Initial	1,58	2,57	39	
CZ1	COBRA	1,67	2,45	32	
_	Blind	1,58	2,48	36	
	Initial	1,58	2,56	38	
CZ2	COBRA	1,54	2,58	40	
	Blind	1,56	2,56	39	
CZ3	Initial	1,47	2,60	43	

Die nach DIN 66139 durchgeführte Quecksilber-Porosimetrie ergab die in Abbildung 113 dargestellten Verteilungen. Für jede Probe wurden mehrere Versuche durchgeführt, deren Ergebnisse kaum von den dargestellten Beispielen abweichen. Einige in den Diagrammen nicht dargestellte Poren im mm-Bereich treten zudem in jeder Probe auf, hauptsächlich in der Mitte. Vermutlich handelt es sich dabei um aufsteigende Luftblasen. Die Casings wurden zwar per Kontraktorverfahren verfüllt, die mmgroßen Einschlüsse treten jedoch auch bei den Cobra-Proben auf.

Für CZ1 existieren kaum Poren, die größer als 0,1 µm ausfallen. Bei CZ2 verschieben sich die Kurven etwa um den Faktor 10, hier treten hauptsächlich Poren ab 1 µm auf. Während bei allen Initial- und Blindproben stets ein doppelter Peak erkennbar ist, fehlt bei den beiden Cobra-Proben einer dieser Peaks. Bei CZ1 Cobra fehlt der zweite Peak, bei CZ2 Cobra dagegen der erste (im Vergleich zu den jeweiligen Initial- und Blindproben). Daher liegen beide Cobra-Proben in einem ähnlichen Porendurchmesserbereich, der Peak von CZ1 Cobra ist jedoch höher.

Die Permeabilität des Zements wurde ebenfalls bestimmt (nach DAfStb-Heft 422; 1991: Prüfung von Beton, Empfehlung und Hinweise als Ergänzung zu DIN 1048). Allerdings kam es zu Schwierigkeiten während der Probenpräparation. Da die Cobra-Proben aus der Versuchsanlage durch Bohren und Nasssägen in die richtige Größe gebracht werden mussten, wurden die Rückstellproben nach demselben Verfahren bearbeitet. Danach waren feine Risse in den Proben erkennbar, die das Ergebnis beeinflussen könnten. Um bei vergleichbaren Verhältnissen zu messen, wurden die Proben außerdem bei 20 °C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 65 % gelagert. Es wurde erwartet, dass sich nach kurzer Zeit eine Massenkonstanz einstellt, allerdings war dies erst nach 4 Monaten der Fall. In dieser Zeit wird sich der Zementstein und damit möglicherweise auch die Permeabilität verändert haben. Während die Messungen selbst ordnungsgemäß durchgeführt wurden und davon ausgegangen werden kann, dass sie entsprechend korrekte Ergebnisse lieferten, müssen diese aus den beschriebenen Gründen kritisch betrachtet werden. Die in Tabelle 24 zusammengefassten Permeabilitätskoeffizienten können daher lediglich als Orientierung für die Größenordnung dienen.



Abbildung 113: Porenverteilung der verschiedenen Zementsteine.

Tabelle 24: Permeabilitätskoeffizienten für verschiedene Zementsteine, ungefähre Werte. Es wurde versucht, Proben aus dem oberen und mittleren Bereich des Cobra-Zementsteins zu messen. Allerdings wurde bei den Versuchsreihen CZ1 und CZ2 jeweils eine dieser Proben so stark beschädigt, dass eine Messung bzw. Präparation nicht möglich war. Aus demselben Grund sind keine Werte für CZ2 Initial vorhanden. Bei A- und B-Proben war es möglich, mehrere Proben aus einer ursprünglichen Probe herzustellen. 1 und 2 bedeutet, dass die Probe gemessen wurde (1) und nach 4 Tagen eine Wiederholungsmessung (2) erfolgte.

Probe	Permeabilitätskoeffizient [m ²]
CZ1 Initial A	1,3E-15
CZ1 Initial B	8,3E-16
CZ1 Blind	2,9E-16
CZ1 Cobra oben A1	8,9E-15
CZ1 Cobra oben A2	9,1E-15
CZ1 Cobra oben B1	3,2E-15
CZ1 Cobra oben B2	3,5E-15
CZ1 Cobra oben C	4,7E-15
CZ2 Blind	2,4E-15
CZ2 Cobra	6,1E-16
Aus den erläuterten Gründen können kaum Rückschlüsse aus den Werten gezogen werden. Die Rissbildung wird eher zu einer höheren gemessenen Permeabilität führen, die verstrichene Zeit könnte sowohl zu einer Erhöhung als auch zu einer Erniedrigung der Permeabilität führen. Für weitere Versuchsreihen wird auf Basis dieser Erfahrungen folgendes Vorgehen vorgeschlagen: Alle Proben zur Bestimmung der Permeabilität (Initial, Blind, Cobra) werden beim Verfüllen der Rückstellprobenbehälter zusätzlich in Probenbehälter gefüllt, deren Maße bereits auf die Permeabilitätsmessung abgestimmt sind. So kann Sägen und Bohren vermieden werden. Während der Aushärtung werden diese Permeabilitäts-Proben mit den Rückstellproben gelagert. Beim Einbau des Casings wird die Cobra-Permeabilitäts-Probe in die Anlage gelegt, eventuell auf 4 kleinen Stützen, falls sich Wasser absetzt. Zeitgleich wird außerdem die Initial-Permeabilitäts-Probe direkt oder mit sehr kurzer Konditionierung gemessen. Beim Ausbau des Casings wird analog verfahren.

Für CZ1 wurden außerdem folgende Frischmörtelkennwerte unmittelbar nach dem Anmischen der Zementsuspension erfasst:

- Suspensionsdichte nach DIN EN 12350-7: 1,92 g/cm³
- Luftporengehalt nach DIN EN 12350-6: 0,4 %
- Ausbreitmaß nach DIN EN 12350-5: 36 cm x 36 cm

7.3 Detailbeschreibung der Untersuchung Geologischer Analoga

7.3.1 Basaltgänge von Buggingen

7.3.1.1 Allgemeine Angaben zur Grube Buggingen

Die Grubenrisse wurden mit den in der Literatur beschriebenen Gangstrukturen von Buggingen verglichen.



Abbildung 114: Tektonische Übersichtskarte der Kalisalzlagerstätte von Buggingen mit vermuteten Basaltgängen (aus Esslinger 1976).

In Abbildung 114 sind zwei große Basaltgänge im Westteil der Grube Buggingen verzeichnet. Ein weiterer Basaltgang wurde im Ostteil der Grube vermutet. Die Basaltgänge sind über ca. 2 km verfolgbar, aber nicht weiter belegt. Anhand von weiteren Recherchen ergibt sich nun folgendes Bild: Nach Hasemann (1952) sind die Gänge an drei Stellen im Nordteil der Grube angetroffen worden. Die Verbindungslinie weist eine Richtung von N175° auf. Das Einfallen der Gänge ist überwiegend steil bis senkrecht. Ein weiterer Gang wurde auf der 793 m Sohle mit einem Streichen von N20°E angetroffen. Neben den Basaltgängen wurden im Grubengebäude andere Erscheinungen angetroffen, die im Zusammenhang mit der Basaltintrusion auftraten, nämlich Gasbläser, die zu sogenannten Racheln sowie Störungen geringen Ausmaßes führen. Die Störungen wurden meist westlich der Basaltzonen angetroffen. Vergleichbare Erscheinungen liegen im Werra-Gebiet vor, wobei einer der größten Ausbruchsbereiche in Abbildung 66 (Seite 89) dokumentiert ist.

Aus den Grubenrissen und Literaturdaten wurde eine neue Übersichtskarte (Abbildung 69) erstellt, in der die Basaltgänge im Originalmaßstab der Grubenrisse dargestellt wurden.

Aus der Richtungsstabilität der Strukturen ergibt sich, dass zum Zeitpunkt des Aufdringens der Basalte eine maximale Horizontalspannung von etwa N175°E im Untersuchungszeitraum herrschte und auch in den "plastischen" Salzschichten anisotrope Spannungen geherrscht haben müssen. Insgesamt wurde festgestellt, dass die Basaltgänge und die Begleitstrukturen im Salz relativ richtungsstabil sind.

7.3.1.2 Strainraten zum Zeitpunkt des Eindringens der Basalte in das Kalilager Buggingen und im ORG Hierzu ist der Zeitraum der Intrusion der Basalte und die Breite der Basaltgänge sowie die Breite des Salzlagers zu klären.

Für die Basaltgänge, die das Kalilager in Buggingen durchschlagen, sind keine absoluten Altersbestimmungen bekannt. Das in die "Untere bituminöse Zone" der Pechelbronner Schichten eingeschaltete Kalilager wird in das Unteroligozän bzw. ins Obereozän gestellt. Die ersten Altersbestimmungen an den Kalisalzen ergaben mit 18 Mio. Jahre viel zu junge Alter. Lippolt et al. (1963) haben die Daten neu berechnet und kommen zu dem Ergebnis, dass das Kalilager ein K-Ar-Alter von 19,8 ± 1 Mio. Jahren besitzt. Zu erwarten wäre aber auf Grund der geologischen Verhältnisse ein Alter von etwa 30 bis 35 Mio. Jahren. Nach Lippolt et al. (1963) könnte die Lösung des Problems in einer sekundären Metamorphose des Kalisalzlagers liegen. Die sekundäre Laugendurchtränkung steht demnach im Zusammenhang mit tektonischen Störungen. Die von Hasemann (1951) und Wimmenauer (1951) beschriebenen Basaltgänge sind von Vertaubungszonen begleitet. Hier wurde das Kalisalz entlang der Basaltgänge ausgelaugt und durch Steinsalz ersetzt. Dies ist nur durch zirkulierende Lösungen möglich.

Es scheint, dass die Basaltgänge von Buggingen ein mit dem Kaiserstuhlvulkanismus vergleichbares Alter besitzen. Im Kaiserstuhlgebiet war der Miozäne Vulkanismus stark ausgeprägt. Sein miozänes Alter wird durch radiometrische Altersbestimmungen, Spaltspuren Alter und durch stratigraphische Befunde ins Miozän gestellt (Lippolt et al. 1963, Baranyi et al. 1976, Wagner 1976, Tobien 1958) und auf einen Zeitraum von ca. 15 bis 18 Mio. Jahren (oberes Untermiozän bis unteres Mittelmiozän, Burdigalium-Langhium nach DST 2002) recht sicher eingegrenzt (Schleicher & Keller 1991). Die Magmen des Kaiserstuhls haben vermutlich Störungen des gleichen Systems und Alters als Aufstiegswege benutzt.

Schleicher & Keller (1991) bestimmten mit einer Rb/Sr-Isochronenaltersbestimmung für Mineralphasen einer Diatrembrekzie ein Alter von 17,4 \pm 1,1 Mio. Jahren. Dies stimmt gut mit 3 weiteren Altersdaten überein, die Keller & Henjes-Kunst (o. D.) an Gesteinen des Kaiserstuhls bestimmt haben, um das Alter der Karbonatite einzugrenzen. Für einen Sanidin aus der obersten phonolitischen Tephralage (t3) bestimmten sie ein Alter von 16,2 \pm 0,2 Mio. Jahren. Ein Mondhaldeit-Gang ergab ein Alter von 16,6 \pm 0,2 Mio. Jahren und ein Phonolit-Gang erbrachte ein Alter von 17,2 Mio. Jahren. Die Platznahme der ultramafischen Diatrem-Brekzie ist direkt mit der Karbonatit Intrusion in Verbindung zu bringen. Ausgehend von diesen Daten ist die Zeitdauer der 2 Mio. Jahre dauernden Karbonatit-Intrusionen gut bestimmt (Keller & Henjes-Kunst, o. D.). Die wesentlichen magmatischen Ereignisse dürften sich zwischen etwa 16 Mio. Jahren und 18 Mio. Jahren im Jungtertiär I abgespielt haben.

Neben dem Alter der Basaltgänge sind auch die geometrischen Verhältnisse der Basaltgänge von Bedeutung. Für die Breite der Basaltgänge liegen nur wenige Angaben vor. Hasemann (1952) gibt die Breite von 4 Basaltgängen mit 1,8 m, 0,4 m 2,9 m und 1,1 m an. Insgesamt besitzen die Basaltgänge eine kumulative Breite von 6,2 m. Im Nordfeld besitzt das Kalilager eine Breite von etwa 1000 m und im Südbereich eine Breite von etwa 800 m.

Rechnet man mit einem Zeitraum von 1 Mio. Jahre für die magmatischen Ereignisse im Bereich des Kaiserstuhls und von Buggingen, dann ergibt sich für diese Krustendehnung eine Strainrate von $2 \cdot 10^{-16}$ /s. Für einen Zeitraum von 2 Mio. Jahre errechnet sich eine horizontale Strainrate von $1 \cdot 10^{-16}$ /s.

Wie die Dehnungsraten im Salz mit den Dehnungsraten der Kruste zusammenhängen, ist schwer abzuschätzen und hängt vom Kopplungsgrad ab. Spannungsdeviatoren im Salz können durch Kriechprozesse abgebaut werden. Die Basaltaufstiege sind ein Phänomen, das sich über Tage/Stunden ereignen kann. Unabhängig vom Salzkriechen können die horizontalen Krustendehnungen auch zu einer Absenkung der Horizontalspannung im Salz führen, was das gerichtete Eindringen von Magma begünstigt.

Westlich von Buggingen können weitere Informationen aus Bohrungen gewonnen werden. Die Tertiärbasis im Bereich der Bohrung Weinstetten liegt nach Doebl (1970) bei 1986 m, in der Bohrung DP 73 bei 2050 m, in der Bohrung Hartheim 1 bei 2700 m und in der Bohrung Griesheim bei 2400 m. Die beiden Bohrungen im Bereich des Diapirs von Weistetten (DP 73 und Weinstetten 1) haben ihre Tertiärbasis bei 1986 m bzw. 2050 m unter Gelände.

Somit kann im Bereich Weinstetten von einer Tertiärmächtigkeit von etwa 2000 m ausgegangen werden. Die salinaren Schichten sind insbesondere in den unteren Abschnitten entwickelt. Somit kann davon ausgegangen werden, dass die Salzbasis, die am Aufstieg beteiligt war bei etwa 2000 m unter Gelände lag. Falls Aquitan noch abgelagert und abgetragen wurde, kann die Mächtigkeit auch etwas größer gewesen sein. In der Bohrung Söllingen 1, mit dem südlichsten Nachweis von Aquitan, betrug die Mächtigkeit 383 m, während sie bei Forchheim, weiter nördlich, noch bei ca. 700 m lag. Dies deutet auf ein starkes Ausdünnen der Aquitanmächtigkeit nach Süden hin. Somit wird für den Bereich Weinstetten von einer maximalen Überlagerung des Salzes von 2000 m ausgegangen. Für 500 m Aufstieg (von ca. 1250 m bis ca. 750 m am Top obere Bituminöse Zone, Abbildung 115) berechnet sich die Aufstiegsrate zu 0,036 mm/a bzw. **die vertikale Strainrate berechnet sich zu: 500/(2000 x 14 Mio. Jahre) = 5,7·10⁻¹⁶/s**.



Abbildung 115: Lagerungsverhältnisse vom Eozän bis zum Quartär im Diapir von Weinstetten (Esslinger, 1976)

Schwarz & Henk (2005) nehmen zwei Deformationsphasen während des Tertiärs im Oberrheingraben an. Für die erste WNW-ESE gerichtete Extensionsphase geben sie die Geschwindigkeit für die Krustendehnung mit 1,1 mm/a an. Den Zeitraum für die Krustendehnung geben sie mit vom oberen Priabon (Lymnäenmergel, ca. 34 Mio. Jahre) bis ins frühe Aquitan (Corbicula-Schichten, 23 Mio. Jahre) reichend an. Dieser Zeitraum ist mit 11 Mio. Jahren etwas niedriger als die oben angenommen 14 Mio. Jahre. Rechnet man für die Deformation des Salzes mit nur 11 Mio. Jahren dann berechnet sich die Strainrate zu 5,6*10⁻¹⁶/s. Für den südlichen Oberrheingraben geben Schwarz & Henk (2005) die (horizontalen) Strainraten für den Zeitraum vom oberen Priabon bis zu den Corbicula-Schichten mit 1,5*10⁻¹⁶/s an. Dies ist etwas geringer als die vertikalen Strainraten die sich aus der Analyse des Salzaufstiegs ergeben.

Allerdings ergibt sich ein Widerspruch zwischen der Annahme von Schwarz & Henk (2005), dass die Krustendehnung zwischen den Lymnäenmergeln (ca. 34 Mio. Jahre) und den Corbicula-Schichten (ca. 23 Mio. Jahre) stattfand, während für das Diapirstadium (mit einer Einengung) ein Zeitraum von maximal etwa 30 Mio. Jahren bis 16 Mio. Jahren angenommen werden kann. Da der Kaiserstuhlvulkanismus (mit Krustendehnung) um 16 Mio. Jahre liegt, bliebe für ein Einengungsstadium nur der Zeitraum von etwa 23 Mio. Jahren bis 16 Mio. Jahren bis 16 Mio. Jahren bis 16 Mio. Jahren bis 16 Mio. Jahren die Sedimentation im Nördlichen Oberrheingraben noch bis Langh bzw. ins Serravall (bis ca. 15 Mio. Jahre) anhielt.

Die zweite Hauptdeformationsphase danach ist als sinistrale Blattverschiebungsphase gekennzeichnet. Hier gehen sie von vergleichbaren Deformationsraten von 1,0 mm/a im Zeitraum von 23 Mio. Jahren bis 12 Mio. Jahren aus.

Betrachtet man einen deutlich längeren Zeitraum im Oberrheingraben, dann lassen sich die Strainraten für den Oberrheingraben grob abschätzen. Geht man von einer Sedimentmächtigkeit von bis zu 3500 m aus, die seit Beginn der Hauptsedimentation der Lymnäenmergel im Mittleren Lutet vor etwa 45 Mio. Jahren begann, dann ergibt sich eine mittlere Absenkungsgeschwindigkeit von 0,078 mm/a. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass zwischenzeitlich auch Hebungen stattgefunden haben können. Zum Teil ergeben sich deutlich höhere Absenkungsraten für kürzere Intervalle der Erdgeschichte. Ein Beispiel mit hohen Sedimentationsraten stellen die Ablagerung der Oberen Hydrobienschichten dar. Diese wurden in einem Zeitraum von etwa 1 Mio. Jahren zwischen 19 und 18 Mio. Jahren abgelagert. In der Bohrung Offenbach 101 reichen die Oberen Hydrobienschichten von 171,5 m bis 714,0 m Tiefe. Hieraus ergibt sich eine mittlere Sedimentationsrate von etwa 0,54 mm/a. Geht man von 20 km Krustenmächtigkeit zur Berechnung der Strainraten aus, so ergeben sich für den Zeitraum von etwa 18 bis 19 Mio. Jahren (Hydrobienschichten) eine (Vertikale) Strainrate von bis zu 8,3 x 10⁻¹⁶/s. Insgesamt ergibt sich in den letzten 30 Mio. Jahren eine Absenkung im Oberrheingraben, die aber nicht immer gleichmäßig ablief.

Die hohen Sedimentationsraten während der Ablagerung der Hydrobienschichten deuten auf einen Zeitraum mit sehr hohen Strainraten hin. Dieser Zeitraum stimmt relativ gut mit dem Zeitraum des Kaiserstuhlvulkanismus überein (ca. 16-18 Mio. Jahre). Eventuell ist der Kaiserstuhlvulkanismus geringfügig jünger als der Ablagerungszeitraum der Hydrobienschichten. Somit könnte der Vulkanismus auch Folge der Platzschaffung zuvor sein. Extensionsraten von 1[.]10^{.16}/s oder höher können für das Tertiär als wahrscheinlich angesehen werden.

Die Krustenstrainraten haben das Eindringen von Basalt in Salz begünstigt, d.h. dass das Salz mit Rissbildung aufgrund der vorherrschenden Extensionsbedingungen mit mutmaßlichen großen Spannungsdeviatoren unter geringer Einspannung (σ_{min}) reagiert.

7.3.1.3 Richtung und Alter der Basaltgänge im Werra-Kali-Revier

Die Basaltgänge im Zechsteinsalz der Grube Merkers stehen mit dem Rhönvulkanismus in Verbindung. Dieser hat ein Alter von etwa 20 bis 18 Mio. Jahren. Ein Vergleich mit dem Vulkanismus des Kaiserstuhls ergibt, dass der Kaiserstuhlvulkanismus etwas jünger ist. Hier haben sich die wesentlichen magmatischen Ereignisse in einem Zeitraum von 2 Mio. Jahren zwischen etwa 16 Mio. Jahren und 18 Mio. Jahren im Jungtertiär I abgespielt.

Bei der Orientierung der Basaltgänge in Buggingen ergab sich eine Richtungsstabilität der Strukturen zum Zeitpunkt des Aufdringens der Basalte. Aus der Richtung der Basaltgänge kann eine maximale Horizontalspannung von etwa N175°abgeleitet werden. Die Richtung der Basaltgänge des Kaiserstuhls (Bugggingen) wird nun mit denen im Werra-Kali-Revier verglichen.

Im Bereich des Werra-Kali-Reviers sind sehr viele Basaltgänge dokumentiert (Lützner et al. 1981, Brosig et al. 2014). Über Tage sind die Basaltgänge relativ schlecht aufgeschlossen. Eine Ausnahme bildet der Basaltgang am Bahnhof von Hörschel. Hier wurde in der Stützwand am Hangfuß des Hörschelberges ein "geologisches Fenster" (Breite etwa 5 m, Höhe etwa 3,5 m) ausgespart. Im Muschelkalk ist hier ein Basanit-Gang zu erkennen (Abbildung 70). Nach der Geotop Kurzbeschreibung ist er der nordöstlichste Ausläufer des tertiären Rhönvulkanismus.

Da der Gang nur wenige Dezimeter von der ICE-Stecke entfernt ist, ist der Gang nicht direkt zugänglich. Die geometrischen Verhältnisse wurden deshalb an Fotos und Karten bestimmt. Wie in Merkers sind auch hier keine deutlichen Bewegungen zu erkennen die auf Auf- oder Abschiebungen zurückzuführen sind. Der Gang selbst und die Begleitstrukturen sind aber auf Extensionbewegungen zurückzuführen. Diese sind vermutlich ursächlich für das Aufdringen des Basaltganges.

Der Gang streicht etwa N15°E und fällt mit etwa 75° - 80° nach Osten ein. Er hat eine Breite von etwa 60 cm (min. ca. 51 cm und max. ca. 63 cm). Etwa 1,20 m westlich des Ganges befindet sich eine parallele Struktur, von der aus das Nebengestein des Unteren Muschelkalkes gelblich verfärbt ist. Im Zentrum der etwa 80 bis 90 cm breiten Bleichungszone befindet sich eine fiedrig absetzende Struktur. Diese Struktur entspricht den Ruscheln, die parallel zu den Basaltgängen in Buggingen verlaufen und von Gasen durchströmt wurden. Nach Abratis et al. 2007 ist der Basaltgang der älteste im Untersuchungsbereich und besitzt ein Alter von 29 Mio. Jahren.

Die mittlere Breite der Gänge im Werra-Kali-Revier liegt bei 0,55 m und die Höhe der Basaltgänge im Zechstein kann mit etwa 400 m angesetzt werden. Die Gänge sind sehr richtungsstabil und streichen etwa Nord-Süd. Im westlichen Teil ist ein leichtes Drehen in die NNW-SSE Richtung zu erkennen. Im östlichen Teil der Karte des Werra Reviers drehen die Gänge stärker in Richtung NNE ein. Im Bereich der großen Vulkane besitzen die Gänge auch eine leichte radiale Komponente. Mit zunehmender Entfernung drehen die Gänge aber rasch in eine Nord-Süd-Richtung ein.

Im Bereich Hattorf/Unterbreizbach wurden Basaltgänge mit einer Länge von insgesamt 50 km Länge identifiziert (Lützner et al. 1981, Abbildung 71). Die Richtungsrose der Gänge (ca. 110 Werte für 55 km Gänge) für den Bereich des Werra-Reviers ähnelt der von Buggingen. Dies deutet auf ein großräumig vergleichbares Spannungsfeld im Miozän hin. Das Alter der Basalte im Bereich der Rhön beruht im Wesentlichen auf Argon Altersbestimmungen (Abratis et al. 2007). Hier wird der Zerfall von Kalium zu den Argonisotopen zur Datierung der Basalte genutzt. Da die Basalte die Kalisalze durchschlagen, ist eine Kontaminierung der Miozänen Proben durch Zechsteinmaterial möglich, was sich bei der Abschätzung der Strainraten negativ bemerkbar machen könnte. Aus diesem Grunde sollen die physikalisch bestimmten Alter mit mit geologischen Methoden bestimmten Altern verglichen werden. Dies ist am Dietrichsberg möglich. Der Dietrichsberg befindet sich südlich von Vacha am Nordrand der Thüringischen Rhön.



Abbildung 116: Profilschnitt im Bereich des Werra-Reviers. An der Oberfläche sind die Gesteine des Buntsandsteins und des Muschelkalkes verbreitet. Keuper ist nur noch reliktisch erhalten. Tertiär ist meist unterhalb von Basaltdecken konserviert.

In Abbildung 116 ist ein Profilschnitt im Bereich des Kalireviers dargestellt. Demnach ist hier die Schichtenfolge vom Unteren Buntsandstein bis zum Oberen Muschelkalk vorhanden. Im Bereich des Dietrichsbergs sind geringe Reste von Keuper vorhanden (Gümbel, F. 2008). Postmesozoisch wurden terrestrische Ablagerungen des Tertiärs abgelagert, die von Basaltdecken überdeckt sind. Die Basalte des Dietrichsbergs sind nach Abratis et al. (2007) 18,9 bis 18,3 Mio. Jahre alt. Die Tertiären Sedimente des Dietrichsbergs werden als Maarablagerungen gedeutet. Dementsprechend müssen die tertiären Sedimente im Liegenenden des Basaltes etwa gleichalt oder älter sein. Die biostratigraphischen Einschätzungen ergeben ein Untermiozänes Alter der Fauna (Unteres bis Mittleres Burdigalium MN 3). Die Zone MN 3 entspricht einem Alter von 18,0 bis 22,0 Mio. Jahren. Somit können die radiometrisch ermittelten Alter von 18,3+0,6 Mio. Jahren und 18,9+0,8 Mio. Jahren für den Dietrichsberg-Vulkanismus als plausibel angesehen werden. Der Dietrichsberg ist zwischen Sünna und Deichroda zu erkennen.

Die Richtungsrose der Basaltgänge im Bereich des Kalireviers Werra (Abbildung 71) zeigt eine deutliche Nord-Südausrichtung. In Rot ist die Richtung der rezenten maximalen Horizontalspannung im Subsalinar bei Sünna dargestellt (nach German Stress Map 2016, Reiter et al. 2015).

7.3.1.4 Abschätzung von Strainraten in Salzstrukturen (International)

Jackson & Houdec 2017 haben eine Reihe von Tabellen publiziert, in denen die Strainraten für verschiedene Salzstrukturen aufgezählt sind (Tabelle 25). Die meisten verdeckten Salzdiapire besitzen Aufstiegsraten um 10^{-15} /s bis 10^{-16} /s. Die höchste Aufstiegsrate liegt bei 2×10^{-14} /s und die niedrigste Strainrate liegt bei 7×10^{-19} /s. Aufstiegsraten von austretenden Diapieren liegen zwischen 2×10^{-11} /s und 4×10^{-15} /s. Die meisten Werte liegen zwischen 5×10^{-13} /s und 5×10^{-14} /s und sind deutlich höher als die der überdeckten Diapire.

Die Salzgletscher, die an Land im Iran auftreten, haben zum Teil sehr hohe Strainraten (Tabelle 27). Die Strainraten liegen für die Gletscher im Iran zwischen 2×10^{-9} /s und 7×10^{-13} /s. Auch untermeerisch treten Salzgletscher im Golf von Mexiko und im Roten Meer auf. Die submarinen Salzgletscher im Golf von Mexiko besitzen Strainraten zwischen 7×10^{-14} /s und 3×10^{-16} /s. Insbesondere feuchtes Salz neigt zu hohen Strainraten (Tabelle 28).

Tabelle 25 Aufstiegsraten von verdeckten Salzdiapiren

Type of Structure	Location	Displacemant [mm/a]	Strain rate [/s]	Duration [a]	Reference
Crest of buried diapir, rise rate	Segeberg, Zechstein Basin, Germany	2	1*10 ⁻¹⁴	20.000	Teichmüller 1948
Crest of buried diapir, rise rate	Diapir, Zechstein Basin, Germany from thickness of downbuilding sequence	0,3	2*10 ⁻¹⁵	35*10 ⁶ to 130*10 ⁶	Trusheim 1960
Crest of buried diapir, rise rate	Five diapirs, Zechstein Basin, Germany, from stratigraphic thinning towards diapir	Five diapirs, Zechstein Basin, Germany, thinning towards diapir0,0008 to 0,0057*10 3*10		80*10 ⁶	Hospers & Holthe 1984
Crest of buried diapir, rise rate	Kyle Monan, North Piece and South Pierce, Zechstein Basin, North Sea, from stratigraphic thinning towards	North Piece and South stein Basin, North Sea, raphic thinning towards		25*10 ⁶	Davison et al. 2000a
Crest of buried diapir, rise rate	Sigsbee Knolls, Gulf of Mexico basin, USA, from age of roof strata	1	5*10 ⁻¹⁵	200.000	Ewing & Ewing 1962
Crest of buried diapir, rise rate	Diapir in East Texas, USA, peak rate from changing volumes of withdrawal basin	0,2 to 0,5	6*10 ⁻¹⁶ to 4*10 ⁻¹⁵	1*10 ⁶ to 13*10 ⁶	Seni & Jackson 1983b
Crest of buried diapir, rise rate	Diapir in East Texas, USA, overall rate from changing volumes of withdrawal basin	0,04 to 0,2	1*10 ⁻¹⁶ to 1*10 ⁻¹⁵	30*10 ⁶ to 56*10 ⁶	Seni & Jackson 1983b
Crest of buried diapir, rise rate	El Papalote, La Popa basin, Mexico, from thickness of downbuilding sequence	4	2*10 ⁻¹⁴	500.000	Rowan et al. 2003
Crest of buried diapir, rise rate	Weeks Island, Louisiana, USA, from uplift of fluvial sediments	2	4*10 ⁻¹⁵	25.000	Autin 2002

Tabelle 26: Aufstiegsraten von austretenden Salzdiapiren

Type of Structure	Location	Displacemant [mm/a]	Strain rate [/s]	Duration [a]	Reference
Crest of emergent diapir, rise rate	Kuh-e-Jahani, Hormoz basin, Iran, from profile and assumed velocity	2000 -3000	1*10 ⁻¹¹ to 2*10 ⁻¹¹	55.000	Talbot et al. 2000
Crest of emergent diapir, rise rate	Namakdan, Hormoz basin, Iran, from uplift of marine terraces	6	3*10 ⁻¹⁴	1-100	Reyss et al. 1998
Crest of emergent diapir, rise rate	Namakdan, Hormoz basin, Iran, from uplift of marine terraces	2 to 12	8*10 ⁻¹⁵ to 5*10 ⁻¹⁴	6.000	Pirazzoli et al. 2004
Crest of emergent diapir, rise rate	Namakdan, Hormoz basin, Iran, from uplift of marine terraces	1 to 3 (rim) 3 to 5 (core)	4*10 ⁻¹⁵ to 2*10 ⁻¹⁴	8.700	Bruthans et al. 2006
Crest of emergent diapir, rise rate	Hormoz Island, Hormoz basin, Iran, from uplift of marine terraces	2 (rim) 5 to 6 (core)	6*10 ⁻¹⁵ to 2*10 ⁻¹⁴	9.600	Bruthans et al. 2006

Crest of emergent diapir, rise rate	Qom Kuh, Qom basin, Iran, from profile and assumed velocity	80	5*10 ⁻¹³	42.000	Talbot & Afrabi 2004	
Crest of emergent diapir, rise rate	Al Salf, Tihama plain, Yemen, from uplift of marine terraces	5	3*10 ⁻¹⁴	3.700	Davison et al. 1996b	
Crest of emergent diapir, rise rate	Mt. Sedom, Dead Sea basin, Israel, from offset of dissolution table	3 to 4	2*10 ⁻¹⁴ to 3*10 ⁻¹⁴	11.000	000 Zak & Freund 1980	
Crest of emergent diapir, rise rate	Mt. Sedom, Dead Sea basin, Israel, from uplift of caves	6 to 7	4*10 ⁻¹⁴ to 5*10 ⁻¹⁴	12.000	Frumkin 1996a	
Crest of emergent diapir, rise rate	Mt. Sedom, Dead Sea basin, Israel, from uplift of terraces	6 to 9	4*10 ⁻¹⁴ to 6*10 ⁻¹⁴	6.000	Frumkin 1996a	
Crest of emergent diapir, rise rate	Mt. Sedom, Dead Sea basin, Israel, from Insar Survey	7 to 9	5*10 ⁻¹⁴ to 6*10 ⁻¹⁴	1,2 to 5,3	3 Marco et al. 2002	
Crest of emergent diapir, rise rate	Mt. Sedom, Dead Sea basin, Israel, from geometry and assumed viscosity	8 to 11	6*10 ⁻¹³ to 8*10 ⁻¹³	14.000	Weinberger et al. 2006	
Crest of emergent diapir, rise rate	Mt. Sedom, Dead Sea basin, Israel, from Insar Survey	6 to 8	5*10 ⁻¹³ to 6*10 ⁻¹³	0,3 to 6	Weinberger et al. 2006	

Tabelle 27: Ausbreitungsraten von Salzgletschern

Type of Structure	Location	Displacemant [mm/a]	Strain rate [/s]	Duration [a]	Reference
Subarial salt glaciers	Five salt glaciers, Hormoz basin, Iran; estimated from morphology	90	9*10 ⁻¹³		Wenkert 1979
Subarial salt glaciers	Kuh-e-Namak (Busher), Hormoz basin, Iran; estimated from alidade survey	500	1*10 ⁻¹¹ to 2*10 ⁻⁹	0,8	Talbot & Rogers 1980
Subarial salt glaciers	Kuh-e-Namak, Hormoz basin, Iran; estimated from profile and assumed viscosity	ormoz basin, Iran; 2000 7*10 ⁻¹³ t n profile and 9*10 ⁻¹³			Talbot & Jarvis 1984
Subarial salt glaciers	Kuh-e-Jahani, Hormoz basin, Iran; from alidade survey	500 to 4000 2*10 ⁻¹² to 2*10 ⁻¹¹		1,4	Talbot et al. 2000
Submarine salt glaciers	Bourbon, Gulf of Mexico, from structural restoration	2	8*10-15		Schuster 1995
Submarine salt glaciers	Bay Marchand-Terrebonne, Gulf of Mexico, from structural restoration	2	2 6*10-15		Diegel et al. 1995
Submarine salt glaciers	South Timbalier, Gulf of Mexico, from structural restoration	14	14 7*10 ⁻¹⁴ 5*		McBride 1998
Submarine salt glaciers	Mitchell (Mica), Gulf of Mexico, from structural restoration	1 4*10 ⁻¹⁵ 6*10		6*10 ⁶	Fletcher et al. 1995
Submarine salt glaciers	Sigsbee Escarpment Gulf of Mexico, from structural restoration	2 9*10 ⁻¹⁶ 28*1		28*10 ⁶	Diegel et al. 1995
Submarine salt glaciers	Sigsbee Escarpment Gulf of Mexico, from structural restoration	1	3*10 ⁻¹⁶	28*10 ⁶	Peel et al. 1995

Talbot & Jarvis (1984) haben den Salzgletscher Kuh-e-Namak untersucht. Sie schätzen, dass sich das austretende Salz 42 bis 85 Mal schneller bewegt als das aufsteigende Salz im Diapir. Markierungen, die auf dem Kuh-e-Namak für zwei Monate im Jahr 1977 aufgemalt waren, zeigten, dass nach Regefällen der Salzgletscher sich an zwei Tagen um einen Meter bewegt hatte (Talbot & Rogers 1980). Bei ihrem nächsten Besuch, im Juni 1984, waren die Markierungen nicht mehr erkennbar. Lediglich eine Markierung war noch auffindbar. Diese Markierung hatte sich über 50 cm an zwei Tagen im Januar 1977 bewegt. Aber in den nächsten 17 Jahren bewegte sie sich nur mit einer Durchschnittsrate von 4 cm pro Jahr hangabwärts. Eine neue Markierung, die im November 1995 aufgesprüht wurde, zeigte bis zum November 1996 keine signifikante Bewegung. Hingegen zeigte der Salzgletscher im November 1977 während der feuchten Jahreszeit eine Bewegung von 180 cm. Die Markierung bewegte sich in 20 Jahren um 3 m und im Durchschnitt um 15 cm pro Jahr, wobei es zu einzelnen Bewegungen von 50 cm und 180 cm kam. Die ersten 50 cm bewegten sich an zwei Tagen und die 180 cm in einem Jahr. Der Salzgletscher bewegt sich nach leichten Regenfällen von 5 mm (Talbot & Rogers 1880).

Die Verschiebung am Kuh-e-Jahani wurde zwischen 1994 und 1996 mit einem Theodoliten gemessen. Die Verschiebungsrate betrug bis zu 4 m pro Jahr, im Mittel betrug die Verschiebungsrate annähernd 2 m pro Jahr. Dies entspricht einer Strainrate von 1*10⁻¹¹/s (Talbot et al. 2000).

Type of Structure	Location	Displacemant [mm/a]	Strain rate [/s]	Duration [a]	Reference
?	Neustassfurt mine, Zechstein basin, Germany, radial convergence	0,5 to 5	Not applicable	0,2 to 2	Busch 1907
Salt diapir	Grand Saline, East Texas basin, USA, galleries	2	Not applicable	10	Serata & Gloyna 1959
Salt diapir	Grand Saline, East Texas basin, USA, galleries	9	Not applicable	0,0001	Reynolds& Gloyna 1960
Bedded salt	Hutchinson, Kansas, USA	0,02 to 0,03	Not applicable	0,8 to 30	Snyder & Dellwig 1961
?	Zechstein basin, Germany, radial convergence	2	Not applicable	3	Höfer 1964
?	Zechstein basin, Germany, radial convergence	100 to 200	Not applicable	0,1	Barron & Toews 1964
?	Zechstein basin, Germany, vertical convergence	7700	Not applicable	0,02	Mraz 1973
Salt diapir	Asse, Zechstein basin, Germany, vertical convergence		1*10 ⁻⁹ to 4*10 ⁻⁹	0,01 to 0,2	Kuhn & Verkerk 1980
Bedded salt	Epe, Zechstein basin, Germany, vertical convergence	20 to 25	6,3 * 10 ⁻¹³ to 7,9*10- ¹³	5	Westerhaus

Tabelle 28: Verschiebungsraten für Hohlräume in Salz

Insbesondere feuchtes Salz neigt zu hohen Strainraten. Bosak et al. (1998) beschreiben die Rolle von Aquiferen in der Verwitterungszone von Salzdipiren. Danach besteht die Permeabilität der Evaporite aus Klüften (Fracture Type) und lokal wird die Permeabilität auch durch Karst erzeugt. Die primäre Quelle für das Grundwasser im Salzdiapir sind atmosphärische Niederschläge, die in die permeable Zone des verwitterten Diapirs eindringen. Zusätzlich beschreiben Bosak et al (1998), dass auch Wasser durch die Kondensation von Wasserdampf aus der Luft zur Bildung von Grundwasser führen kann. Der klimatische Zyklus der Region und die Retentionskapazität des porösen Karsts bestimmen das hydrologische Regime der Salz Diapire.

In der regenreichen Zeit (Dezember bis Februar) werden die Poren und Karsthohlräume mit Wasser gefüllt, wobei es zu erheblichen Oberflächenabflüssen kommt. In der trockenen Jahreszeit versiegen allmählich die akkumulierten Reserven der Quellen. In kleinen hydrogeologischen Einzugsgebieten mit geringer Akkumulationskapazität kommt es zu einer gänzlichen Entwässerung des Aquifers.

Nur größere Systeme mit Karst Erscheinungen können dazu führen, dass die Quellen auch in der gesamten trockenen Periode Wasser führen. Die mittlere Phase der Zerstörung eines oberirdischen Salzdiapiers ist die hydrogeologisch aktivste Phase des Salzdiapirs. In dieser Phase existieren ausgewaschene Kluftsysteme und Karsthohlräume und es besteht eine Langzeitspeicherung von akkumuliertem Grundwasser. Abbildung 117 zeigt einen Schnitt durch einen hydraulisch aktiven Salzdiapir. Abbildung 117 zeigt die Wasserspiegellage und die geklüfteten Bereiche des Salzgletschers sowie die Lage der Quellen im Salz.



w. I.: ground water level spr.: seasonal spring

Abbildung 117: Schematischer Querschnitt durch einen aktiven Salz Diapir (aus Bosak et al. 1998).

7.3.2 Rezenter Spannungszustand im Werra Kalirevier

Im Salz geht man aufgrund der vorliegenden Kriechfähigkeit des Salzes (keine Kriechgrenze) allgemein von einem lithostatischen Druck aus. Im Werra Revier sind große Mengen an CO₂ eingeschlossen, die somit ebenfalls unter lithostatischem Druck stehen. Zum regionalen Spannungsfeld, dem Spannungsfeld im Zechsteinsalz und dem Spannungsfeld im Rotliegend (u.a. Karbonat/Anhydrit bzw. Sandsteine) unter dem Zechsteinsalz des Werra-Kalireviers sind nur wenige Informationen vorhanden. Sie stammen aus Untersuchungen eines Gasausbruchs und Hydraulic-Fracturing Messungen (Tabelle 29).

Bei Sünna gibt es eine Hydraulic Fracturing Messung aus der die Orientierung der maximalen Horizontalspannung mit N148° angegeben ist (Grünthal & Strohmeyer, 1992). Die Messung fand in einer Teufe von 808 m im Rotliegend unterhalb des Zechstein (Subsalinar) statt. In einer Bohrung bei Vacha mit den Koordinaten N 50,783° und E 10,00° ist die Richtung der maximalen Horizontalspannung mit N150° angegeben. Das Verhältnis von S_H zu S_V gibt Knoll (1976) mit 1,2 an und das Verhältnis von S_h zu S_v zu 0,6. Für eine Teufe von 808 m (Rotliegend, Subsalinar) kann die Vertikalspannung zu etwa 19,7 MPa und der Betrag von S_h zu etwa 11,85 MPa abgeschätzt werden.

Für den großen Gas-Ausbruch (s.u.) im Zusammenhang mit einer Sprengung bei Unterbreizbach vom 01.10.2013 gibt IfG (2017) den Druck in einer Teufe von 900 m mit 22 MPa an (24,44 MPa/km). Für eine Teufe von 800 m berechnet sich der lithostatische Druck (und der Porendruck des eingeschlossenen CO_2) und damit auch S_h zu 19,7 MPa im Zechsteinsalz.

Damit ist die minimale Horizontalspannung im Rotliegend (Bohrungen Sünna, Vacha) unterhalb des Zechsteinsalzes mutmaßlich fast 8 MPa niedriger als im Salz darüber. Entsprechend müssen an der Basis des Zechsteins sehr hohe Spannungsgradienten vorhanden sein. Die minimale horizontale Hauptspannung muss hier innerhalb eines sehr kleinen Teufenintervalls von fast 20 MPa auf etwa 12 MPa abnehmen.

Tabelle 29 : Übersicht Spannungszustand im Werra Kalirevier. An den meisten Lokationen sind nur Teilinformationen zu Porendruck (P_p), maximaler horizontaler Hauptspannung (S_h), minimaler horizontaler Hauptspannung (S_h) und Vertikalspannung (S_v) vorhanden.

Lokation	Tiefe	Pp	Sн	Sh	Sv	Orientierung
Messung/Beobachtung	[m]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[MPa]	SH
Bohrung bei Sünna	808			11,85	19,7	NW-SE
Hydraulic Fracturing						
Bohrung Vacha						150
N 50,79° und E 10,00°						
Gasausbruch 1.10.2013	900	19,7				

Die niedrigen Horizontalspannungen im Subsalinar können die Erscheinungen im alten Bergwerk in Springen/Merkers erklären. Hier wurden in den Jahren 1969 und 1976 zwei aktive Salzlösungsvorkommen angetroffen. Das Salzlösungsvorkommen bei Querschlag 23 (Qu. 23) hat ein Gesamtvolumen von 350000 m³ bei einer zentralen Kaverne von 215000 m³. Bei Querschlag Qu. 86 beträgt das Hohlraumvolumen mindestens 20000 m³. Im Jahr 1987 gelang mit dem Bohrloch 18/86 der Nachweis einer Herkunft der Salzlösungen aus dem Subsalinar (Deppe & Pippig 2002) und mit der Bohrung 207E/01 wurde Ende 2001 das wahrscheinliche Zufuhrspaltensystem im Rotliegend erbohrt. Auf einer Kluft von etwa 6 cm Breite strömten mehr als 300 l Salzlösung pro Minute zu. Das Kluftsystem konnte durch die Bohrung 208/01 auch 30 m tiefer im Rotliegend noch nachgewiesen werden. Während der zweiten Erkundungsphase konnte die wahrscheinliche Aufstiegszone der Salzlösung mit einer NNW-SSE streichende Störungszone festgestellt werden (Deppe & Pippig 2002). Diese NNW-SSE streichende Zuflusszone streicht parallel zur Richtung der rezenten maximalen Horizontalspannung und deutet darauf hin, dass unter dem rezenten Spannungsfeld das Subsalinar extensional beansprucht wird.

Aus der Richtung des rezenten Spannungsfeldes und der Richtung der Basaltgänge im Miozän kann abgeleitet werden, dass die Richtung der maximalen Horizontalspannung seit dem Miozän, in den letzten 18 bis 20 Mio. Jahre; um etwa 30° gegen den Uhrzeigersinn rotiert ist. Für Hörschel ergibt sich eine Rotation von etwa 45° seit des Aufdringens des Basaltes vor 29 Mio. Jahren. Die Rotationsraten liegen seit dem Zeitraum von 18 Mio. Jahren bis 20 Mio. Jahren bei etwa 1,67 °/Ma und 1,5150 °/Ma und für Hörschel mit 29 Mio. Jahren bei 1,55 °/Ma.

Letztlich gibt es Hinweise auf dilatante Verformungsprozesse im Salz, aber die genauen Randbedingungen sind unklar. Wie hier nachfolgend ausgeführt, können die Verformungsraten (abhängig von der Dauer der tektonischen Beanspruchung) extrem viel kürzer sein.

Die Spannweite der abgeleiteten Strainraten reicht von relativ langen Zeiträumen von etwa 1 - 2 Mio. Jahren bei Krustendehnung bis zu Kurzereignissen des Basaltdurchschlags innerhalb weniger Tage. Das bedeutet, die Verformungsraten können um mehr als 10 Größenordnungen variieren.

7.3.3 Auswirkungen von Spannungsänderungen auf die Stabilität untertätiger Hohlräume im Salz – weitere Fallbeispiele und Informationen

IfG hat zwei Versuche zu Gasfracs unter Tage ausgeführt. Im Grubenfeld Springen wurde zwischen den beiden Abbausohlen in 275 m und 360 m im Mittleren Werra-Steinsalz ein 50 m³ fassender Bohrschacht aufgefahren und nach Verschluss pneumatisch mit Druckluft beaufschlagt. Bei Erreichen eines Druckes von 68 bar im Bohrschacht kam es zu einem Fluiddurchbruch mit Lösungs- und Gasaustritt zu den ca. 15 m entfernten Messbohrungen. Nach einigen Tagen fiel der Druck auf 57 bar ab.

Innerhalb von etwa 4 Tagen breiteten sich die akustischen Emissionen immer weiter aus und wurden über 20 m weit vom Schacht aus beobachtet (Abbildung 118). Die Rissfläche, die über die akustischen Emissionen nachzuweisen ist, dürfte etwa 400 m² betragen. Die tatsächliche Rissfläche kann aber noch deutlich größer sein. Bei einem Volumen des Bohrschachtes von 50 m³ und einem Druckabfall von 68 bar auf etwa 57 bar muss ein erhebliches Rissvolumen entstanden sein. Bei einer Rissfläche von nur etwa 400 m² würde dies bedeuten, dass der Riss sehr weit geöffnet ist. Wahrscheinlich ist die Rissfläche aber deutlich größer als 400 m² gewesen.



Abbildung 118: Ausbreitung der akustischen Emissionen in Abhängigkeit von der Zeit im Bereich des Bohrschachtes in der Grube Springen (aus IfG, 2017)

Im zweiten Versuch der IfG wurde in einem zum Bohrschacht benachbarten Bohrloch mit einem Volumen von 0,115 m³ Stickstoff ein Druckaufbautest durchgeführt. Das Bohrloch war mit einem hydraulischen Packer verschlossen und trocken, enthielt also im Unterschied zum Bohrschacht keine Salzlösungen. Bei diesem Versuch traten akustische Emissionen in konzentrischen Ringen um das Bohrloch herum auf. Der Versuch zeigt für den Zeitraum vom 24.02. bis zum 27.02.2012, dass der Riss einen Durchmesser von etwa 12 m besitzt. Aus dem Versuchsablauf wird gefolgert, dass die gasdruckgetriebene Perkolation in diesem Fall, ohne Anwesenheit von Salzlösung, dynamisch als Frac-Vorgang abgelaufen ist. Bei einem Riss von etwa 115 m² und einem Volumen von 115 l, die sich im Bohrloch befinden, würde eine Rissweite von etwa 1,0 mm resultieren. Fällt der Druck aber von 68 bar auf etwa 57 bar ab (wie bei dem Schachtexperiment), dann würde sich eine Rissweite von ca. 0,2 mm ergeben. Tatsache ist aber, dass sich trotz des geringen Bohrlochvolumens von nur 0,115 m³ ein Riss mit einem Durchmesser von etwa 12 m (Abbildung 118) mit einer Rissfläche von über 100 m² gebildet hat. Den vergleichsweise geringen Hohlraumvolumina der Versuche stehen extrem große Hohlräume im Salzgebirge gegenüber wie sie im Kalibergbau im Werrarevier angetroffen wurden.



Abbildung 119: Ortung der akustischen Emissionen um das Bohrloch (0,115 m3) bei einer Druckbeaufschlagung mit Stickstoff.

Beispiel 3: CO₂-Ausbruch im Flöz Thüringen in der Grube Unterbreizbach

Bei IfG (2017) ist der mit Abstand größte CO₂-Ausbruch in der Grube Unterbreizbach beschrieben (s.a. Abbildung 66, Seite 89). Durch eine Sprengung am 01.10.2013 wurde die Schutzschicht zu einem ca. 100.000 m³ großen Kavernenhohlraum im hangenden Steinsalz, in dem das CO₂ unter hohem Druck eingeschlossen war, bis auf wenige Meter geschwächt. Dem hohen Fluiddruck von 220 bar (22,0 MPa), in einer Teufe von 900 m, konnte die verbliebene Barriere nicht standhalten und das CO₂ trat explosionsartig in das Grubengebäude ein. Der Druck des eingeschlossenen CO₂ lag bei 22 MPa was weit über dem kritischen Druck für den superkritischen Zustand von CO₂ liegt. Vermutlich lag auch die Gebirgstemperatur in 900 m Teufe geringfügig über der kritischen Temperatur von 31° C.

Bei einer Entspannung des superkritischen CO_2 (ca. 220 bar, 31°C, Abbildung 73, gelber Punkt rechts) auf Atmosphärendruck beträgt der Faktor für die Volumenvergrößerung etwa 500. Der entstandene Hohlraum mit einem Volumen von etwa 100.000 m³ hat eine Länge von etwa 180 m und eine Höhe von maximal 67 m. Damit hat sich dann zwischen Fluiddruck in der Grube und Gebirgsdruck ein Gleichgewichtszustand eingestellt (IfG, 2017).

Die Erosion, die zur Druckentlastung führt, kann für den Bereich des Werrareviers abgeschätzt werden: Im Bereich des Öchsenbergs liegen über dem Oberen Muschelkalk (moC) noch einige Meter Miozän und der Rest einer Basaltdecke. Der Kontakt Basalt/Muschelkalk dürfte in einer Höhe von etwa 550 m NN liegen. Die Abtragung reicht im Bereich Hattorf/Unterbreizbach bis zum Mittleren Buntsandstein. Teile des Mittleren Buntsandsteins, der gesamte Obere Buntsandstein und der Muschelkalk sind hier abgetragen. Der Abtragungsbetrag dürfte postbasaltisch etwa 300 m betragen. Dies deckt sich mit der Rekonstruktion der syn-oligo-/miozänen Deckgebirgsverbreitung (>20 ma) bei Schröder & Peterek 2002. Demnach reichte nach Norden die Verbreitung des Oberen Muschelkalkes und des Unteren Keupers bis zur Mündung der Ulster und der Werra. Nach Schröder & Peterek (2002) lag dort direkt südlich des Untersuchungsgebietes die prä bis syn-oligo-/miozäne Landoberfläche bei etwa 600 m. Eine Abtragung im Bereich von Hattorf/Unterbreizbach im Bereich von etwa 250 m ist sehr wahrscheinlich.

7.3.3.1 Übersicht Gasaustritte im Werra Kali-Revier

Duchrow (1997) beschreibt unzählige Kohlensäurebläser und Ausbrüche von Salz und Kohlensäure aller Größenordnungen - im Bereich von 10^1 bis 10^6 m³_N (Normkubikmeter) Gaslieferung bzw. 10^1 bis

10⁵ t Salzauswurf im Werra Kali-Revier. Aus den Ausführungen von Duchrow (1997) geht deutlich hervor, dass die stärkseten Gasaustritte erst ab 1953 auftraten. Dies mag mit der zunehmenden Teufe der Abbaue bzw. der gleichzeitigen Abbauintensivierung zu tun haben.

7.3.4 Auswirkungen von Überdrücken auf die Integrität des Deckgebirges – weitere Informationen und Fallbeispiele

Fallbeispiel EPE S5, Ölfrac im Deckgebirge

Hydraulische Durchlässigkeiten:

Die Durchlässigkeitsbeiwerte für das Quartär werden von Kukla & Urai (2015) mit $k_f = 1,3 \times 10^{-5}$ m/s bis $k_f = 4 \times 10^{-6}$ m/s angegeben. Die in der Unterkreide auftretenden dunkelgrauen Ton- und Schluffsteine werden als sehr schwach durchlässig charakterisiert. Die Durchlässigkeitsbeiwerte der Unterkreide werden mit $k_f = 2,8 \times 10^{-9}$ m/s und $k_f = 3,8 \times 10^{-10}$ m/s angegeben. Hydraulisch handelt es sich damit um Grundwassernichtleiter (Aquitarde). Hinweise auf ein vor dem Schadensfall vorhandenes, offenes Kluftsystem konnten sie nicht finden.

Da der Ölaustritt am 12.04.2014 festgestellt wurde und der Druckabfall am 23.02.2014 erfolgte steht ein Zeitraum von maximal 50 Tagen für die Ölausbreitung zur Verfügung. Da der Druckabfall am 23.02. bzw. 24.02.2014 erfolgte und danach die Leckagestelle bis 2,5 MPa druckdicht war, ist die Ölausbreitung, getrieben durch den Überdruck, auf einen Zeitraum von vermutlich maximal 2 Tagen beschränkt. Danach kann es noch zu einer Verfrachtung im Quartär gekommen sein. Die Reichweite im Quartär dürfte aber nur gering gewesen sein. Die Ölausbreitung in der Unterkreide über ein Risssystem kann im Wesentlichen nur erfolgt sein, solange ein ausreichend hoher Druck an der Leckagestelle das Öl in die Unterkreide eingepresst hat.

Lage der Ölaustritte und Entfernung zur Kaverne Epe S5:

Im Internet findet sich unter der Webseite des MWIDE NRW ein Lageplan mit Lage der Ölaustrittstellen (Abbildung 120). Der Grenzbereich Quartär/Unterkreide wurde durch 3 große Tiefschürfe mit Teufen bis zu 7,5 m untersucht. Schurf 1 zeigte keine Ölspuren. Im Schurf 2 wurden direkt nach Freilegung auf den unsteten Flächen (Wurzelkanäle, eiszeitliche Geschiebe, Harnische) Öltröpfchen festgestellt. Wie im Schurf 2 wurde auch im Schurf 3 auf den unsteten Flächen (Wurzelkanäle, eiszeitliche Geschiebe, Harnische) Öltröpfchen festgestellt. In Schurf 2 und 3 wurden eine oberflächennahe Auflockerungszone mit kleinstückig zersetzten Tonsteinen angetroffen. Die am weitesten von der Kaverne S5 beobachte Ölaustrittstelle befindet sich im Schurf 2 in der Nähe des Tiefenbeobachters KRU151. Die horizontale Entfernung zwischen der entferntesten Ölaustrittstelle und der Kaverne S5 beträgt fast 700 m. Die Richtung verschiedener Ölaustritte zwischen der Kaverne S5 und dem NE Ölfund bei Schurf 2 beträgt etwa N45°E. Ölaustritte wurden in der Kaverne in einer Teufe von 217,4 m festgestellt.

In Kernbohrungen wurden weitere Daten erhoben

- In der Kernbohrung KRU1, die 58 m von der Kavernenbohrung entfernt niedergebracht wurde, wurden Ölspuren in 169 m bis 183 m Tiefe nachgewiesen. Zwei Maxima lagen bei 170 m bis 171 m und bei 177 m bis 178 m. In der 110 m tiefen KB1 wurden zwischen 17 m und 79,5 m Öl entlang steilstehender offener Klüfte angetroffen (17 m 18 m, 31 m 32 m, 51 m 52 m und 79 m 79,5 m).
- Die Kernbohrung KB3 lag auf der Profillinie etwa 420 m von der Kaverne S5 entfernt (Abbildung 76). Bis zur Endteufe von etwa 80 m wurde in den Teufenbereichen von 11,4 m bis 11,9 m und 15,1 m bis 15,3 m sowie bei 17,8 m Ölzutritte nachgewiesen. In den Teufen von 32 m, 35 m

und 50 m wurden Ölzutritte von der Bohrmannschaft beobachtet. Alle Spülproben unterhalb von 32 m weisen Ölspuren und Geruch auf.

- Die Kernbohrung KB4 ist 60 m tief. Bis zu einer Teufe von 20 m konnten keine Proben gewonnen werden. Öl wurde in Teufen von 26 m bis 30 m und 32 m bis 34 m angetroffen.
- Neben den Ölaustritten auf der SW-NE gerichteten Linie ist ein zweites Zentrum mit Ölaustritten nördlich der Sonde Epe S5 in etwa 400 m Entfernung aufgetreten. Hier wurde die Kernbohrung KB2 niedergebracht (und der Schurf 3 ausgeführt). In KB2 wurde unterhalb der Quartär-Basis in 3,8 m Tiefe bis zur Endteufe bei 80 m eine Schichtenfolge von Tonmergeln und Tonsteinen der Unterkreide (Alb/Apt) angetroffen. Öl wurde in den Teufen von 14,8 m -19,8 m und bei 19 m - 20 m angetroffen. Unterhalb 20 m wurden keine weiteren Ölanzeichen festgestellt.



Abbildung 120: Lage der Bohrungen und Ölaustrittstellen. In die SW-NE geführte Schnittlinie durch die Bohrung Epe S5, KRU1, KB3 und die Schürfe 1 und 2 wurden die Bohrungen KB1 und KB4 in die Schnittlinie (Abbildung 76) projiziert. Grundlage der Abbildung aus dem Bericht MWIDE NRW.

Transportmechanismus des Öls:

Als Vorbemerkung ist festzuhalten, dass jeweils kein Versagen des Wirtsgesteins Steinsalz stattgefunden hat, sondern dass nachgewiesenermaßen eine technische Havarie des Bohrlochstrangs im Deckgebirge vorlag. Das bedeutet, dass nachfolgend die Ausbreitungswege in den verschiedenen Deckgesteinsschichten diskutiert werden.

Aufgrund der großen Entfernung der Ölfunde von der Kaverne und der niedrigen Durchlässigkeit der Unterkreide-Tonsteine ist eine langsame Migration des Öls im Porenraum der Tonsteine ausgeschlossen. Die höchsten Fließgeschwindigkeiten von Fluiden werden bei hydraulischen Stimulationen erreicht. Die Risse öffnen sich sofort, wenn der Druck der Fluide die minimale Horizontalspannung (sowie die Zugfestigkeit und eventuelle Spannungskonzentrationen am Hohlraumrand) überschreitet und Risslängen von einigen 100 m werden in kurzer Zeit erzeugt.

Da der Druckgradient beim Druckverlust in 217,4 m Teufe sehr hoch war, könnten auch horizontale Risse entlang von Schichtflächen geöffnet worden sein. Auch die Öffnung von nicht optimal zum Spannungsfeld gelegenen Strukturen ist bei diesen hohen Drücken möglich. In diesem Falle können auch präexistierende Störungen, Klüfte und Harnische aktiviert werden. Hierbei kann es sich um die Öffnung vorhandener Klüfte handeln, oder um einen hydraulischen Bruch der Formation. Auf die Art der Öffnung kann vor allem die Geometrie der Risse und die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Öls Hinweise geben. Die lange SW-NE-Erstreckung der Ölfunde deutet aber darauf hin, dass der Transport bevorzugt nach NE erfolgte.

Die Ölverteilung kann am ehesten durch einen hydraulischen Frac in NE-Richtung ausgehend von der Leckage erklärt werden. Da sich der Riss wieder geschlossen hat, muss die Rissausbreitung in einem kurzen Zeitraum erfolgt sein (vermutlich am 22.02.2014 und 23.02.2014). Falls Druckaufzeichnungen der Kaverne S5 vorliegen, ließe sich das genauer nachvollziehen. Nachdem der Riss bis an die Oberfläche der Unterkreide durchgeschlagen ist, konnte das Öl ins Quartär infiltrieren. Bei der Rissschließung im tieferen Teil des Risses wurde ein Großteil des Öls zur Quartärbasis ausgepresst. Da die auf eine Rissfläche wirkende Normalspannung bei einem Hydrofrac in der Tiefe größer ist als an der Oberfläche, muss sich der Riss zuerst in Leckagetiefe schließen, wenn der Druck auf einen Wert von unter 4,73 MPa fällt. In etwa 100 m Tiefe reicht eine Normalspannung von 2,0 MPa aus, um den Riss zu schließen. Am Top der Unterkreide (Quartärbasis in wenigen Metern Tiefe) kann sich der Riss erst schließen, wenn der Druck im Riss gegen Null geht.

Abschätzung des freigesetzten Ölvolumens:

In den Daten und Fakten zum Ölschaden in Gronau-Epe hat die Bezirksregierung Arnsberg angegeben, dass 22.912 m³ abgesaugtes Wasser-Öl-Erdgemisch anfielen. Der abgeschiedene Ölanteil wird mit 76 m³ angegeben. Auf Grund des Kavernenvolumens, der Öl- und Soleanteile sowie der Kompressibilität der Stoffe und des Druckabfalles kann die Menge des entwichenen Rohöls berechnet werden. Das Ölvolumen in der Kaverne beträgt nach Angaben der Bezirksregierung Arnsberg (Daten und Fakten) 404.000 m³. Im Gutachten von Kukla und Urai (2015) wird das Kavernenvolumen mit 547.000 m³ angegeben. Nach Berest & Brouard (2003) ist bei einer Leckage die freigesetzte Öl- oder Fluidmenge von der Kompressibilität der Kaverne, der Sole und des gespeicherten Fluids sowie vom Volumen der Kaverne und dem Druckabfall abhängig. Die "Globale Kompressibilität" β des Systems ist abhängig vom Verhältnis x des gespeicherten Öl-Volumens zum Gesamtvolumen der Kaverne und den Kompressibilitäten der Stoffe. Demnach ist:

 $\beta = \beta_c + x \beta_0 + (1-x) \beta_b$

Hierbei ist:

β_c = Kompressibilität der Kaverne

 β_0 = Kompressibilität des Öls

β_b = Kompressibilität der Sole (Brine)

x = Verhältnis von Ölvolumen/Kavernenvolumen

Die Kompressibilität der Kaverne geben sie für ein vergleichbares Beispiel mit 1,3 x 10^{-4} MPa⁻¹ an und die Kompressibilität des Öls mit 6,0 x 10^{-4} MPa⁻¹. Die Kompressibilität der Sohle liegt bei 2,7 x 10^{-4}

MPa⁻¹. Nach Angaben der Bezirksregierung Arnsberg liegt das Ölvolumen der Kaverne bei 404.000 m³ und das Volumen (V) der Kaverne geben Kukla & Urai (2015) mit 547.000 m³ an. Damit berechnet sich x zu 0,74.

Die Gesamtkompressibilität des Systems ergibt sich zu β = 6,442 x 10⁻⁴ MPa⁻¹. Nach Berest & Brouard (2003) berechnet sich das Volumen, das bei einem Druckverlust frei wird, wie folgt:

$\Delta V = \Delta p_i \times \beta \times V$

Für einen Druckabfall von 0,36 MPa, ein Volumen von 547.000 m³ und ein Kompressibilität β = 6,442 x 10⁻⁴ MPa⁻¹ berechnet sich das freigesetzte Ölvolumen zu 130,8 m³. Damit ist ca. die Hälfte des freigesetzten Ölvolumens wieder eingefangen worden.

Abschätzung der Rissfläche

Die kumulative Rissfläche kann mit 30.000 m² bis 60.000 m² abgeschätzt werden. Bei einer entwichenen Ölmenge von 130,8 m³ würde dies einer Rissbreite von etwa 2,18 mm bis 4,33 mm entsprechen. Eine Rissbreite im Millimeterbereich ist für solch einen Frac nicht ungewöhnlich.

Wenn man davon ausgeht, dass von den berechneten 130,8 m³ Öl, 73 m³ Öl abgeschöpft wurden, dann sind über 50 % des Öls in den Schadenszentren entfernt worden. Dies deutet darauf hin, dass das Öl bei der Rissschließung zu einem großen Teil nach oben an die Rissenden ausgepresst wurde. Ein Teil mag noch in den geschlossenen Rissen eingeschlossen sein. Insgesamt kann festgestellt werden, dass für die Ölausbreitung primär ein hydraulisches Aufbrechen des Gebirges (Frac) auf Grund des hohen Überdrucks im Bereich der Leckage verantwortlich ist.

Fallbeispiel Lauchstädt 5, Gasfrac im Deckgebirge

Abbildung 121 zeigt mit welcher Wucht der Ausbruch des Gases an der Oberfläche stattgefunden hat. Ein langsames Entweichen auf Grund der natürlichen Durchlässigkeit des Untergrundes ist als Ursache des Druckverlustes ausgeschlossen. Auf Grund der hohen Kompressibilität des Gases besitzen Gasausbrüche ein sehr viel größeres Potential an der Oberfläche sichtbare Ereignisse zu erzeugen als Ölaustritte.



Abbildung 121: Details der Ausbrüche im Bereich der Sonde Lauchstädt 5 (aus Katzung et al. 1996).

Lage des Speichers:

Die Kaverne befindet sich im Zechsteinsalz in einer Antiklinalstruktur im Bereich Teutschenthal. Das Top des Salinars ist in Abbildung 122 dargestellt und liegt bei etwa 400 m NN. Nach Südwesten sinkt die Struktur auf etwa 700 m ab (Bohrung GT 1).



Abbildung 122: Struktur im Bereich der Kaverne Lauchstädt 5 (aus Katzung et al 1996). Die Kaverne Lauchstädt 5 befindet sich zwischen den Bohrungen Lauchstädt 6 und Lauchstädt 7

Die tiefsten aufgeschlossenen Einheiten im Bereich Lauchstädt/Teutschenthal sind Gesteine des Rotliegend. Der Speicher befindet sich im Staßfurt Steinsalz und wird von weiteren Gesteinen des Zechsteins und des Buntsandsteins abgedeckt.