

Reaktive Reservoirsysteme - Kristallkeimbildung und Filterprozesse in geothermischen Systemen

Sascha Frank¹, Philipp Zuber², Stefan Wohnlich¹ und Jürgen Schreuer²

¹ Lehrstuhl Angewandte Geologie, Ruhr-Universität Bochum

² Arbeitsgruppe Kristallographie, Ruhr-Universität Bochum

Keywords: Geothermie, Reservoir, Ausfällung, Scaling, Baryt, Kristallkeimbildung, Kristallwachstum, Geothermalf fluid, Durchströmungsexperiment, Filtereffekte, hydrogeochemische Modellierung, Nachhaltigkeit

Zusammenfassung

Bei der tiefen geothermischen Energiegewinnung ist die Rückführung geförderter Reservoirfluide nach der Energieausbeute Voraussetzung für die Aufrechterhaltung des Fluiddrucks im Reservoir und damit für eine langjährige Nutzung. Allerdings kann es im Zuge der Reinjektion von Fluiden unter veränderten Temperatur- und Druckbedingungen zur Fällung von Mineralphasen kommen, wodurch die Wegsamkeiten im Reservoir allmählich verschlossen werden. Dieses als Reservoirscaling bekannte Phänomen gehört zu den kritischsten limitierenden Faktoren für die nachhaltige Nutzung tiefer geothermischer Ressourcen. Unklar ist bisher, welche Rolle dabei Kristallkeime spielen, die sich bereits oberirdisch durch Temperaturabsenkung bei der Energieentnahme bilden. Da die heterogene Keimbildung energetisch bevorzugt ist, sind bei Übersättigung der geothermalen Wässer zunächst kristalline Ablagerungen an den Innenwänden von Rohrleitungen die Folge. Jedoch führen turbulenzbedingte Inhomogenitäten bzw. mechanische Störungen auch zur spontanen Bildung freischwimmender Keimkristalle, von denen ein signifikanter Teil von der Strömung mitgerissen und in das Reservoir reinjiziert wird. Dort können sich die typischerweise nano- bis mikrometergroßen Kristallite einerseits durch Filtereffekte kumulieren und andererseits als Kristallisationszentren für Zementationsprozesse fungieren und damit erheblich zum Reservoirscaling beitragen. Untersucht werden die grundlegenden Prozesse, welche zur Bildung kristalliner Phasen bei Abkühlung geothermalen Lösungen führen, und die hydromechanischen Auswirkungen bei Reinjektion entsprechend kristallkeimbelasteter Wässer in das Reservoir.

1. Einleitung

Das vom Bundesministerium für Wirtschaft und Energie (BMWi) geförderte Verbundprojekt „ReSalt“ beschäftigt sich mit der Erforschung von Lösungs- und Fällungsprozessen von Salzen und deren Auswirkungen auf die hydraulischen und mechanischen Gebirgseigenschaften in reaktiven Reservoirsystemen. Dabei werden von unterschiedlichen Arbeitsgruppen die verschiedenen Teilaspekte der mit der Gewinnung von Tiefenwasser zur Energieerzeugung einhergehenden chemischen und hydraulischen Prozesse untersucht, nachgestellt und bewertet. Das hier vorgestellte Teilvorhaben beschreibt die Untersuchungen zu Kristallkeimbildungen und Filterprozessen in geothermischen Systemen.

1.1 Motivation

Im Zuge der Reinjektion von Fluiden bei der tiefen geothermischen Energiegewinnung kann es infolge veränderter Temperatur- und Druckbedingungen zur Übersättigung und damit zur Fällung von Mineralphasen kommen (Gunnlaugsson 1989, Demir et al. 2014), wodurch Wegsamkeiten im

Reservoir allmählich verschlossen werden. Dieser Effekt wird als Reservoirscaling bezeichnet und limitiert nachhaltig die Nutzung geothermischer Ressourcen.

Bisher ist noch unklar, welchen Einfluss dabei Kristallkeime haben, die sich durch die Abkühlung nahezu gesättigter Fluide während der Energiegewinnung an der Oberfläche bilden. Aufgrund der hohen Salinitäten geothermischer Wässer und der damit einhergehenden Sättigungszustände, sind zunächst im Zuge der Förderung kristalline Ablagerungen an Rohrwänden zu erwarten. Neben gut belegten kristallinen Ablagerungen an Rohrwänden treten durch turbulenzbedingte Inhomogenitäten bzw. mechanische Störungen auch freischwimmende spontane gebildete Kristallkeime auf, von denen ein signifikanter Teil von der Strömung mitgerissen und in das Reservoir reinjiziert wird. Dort können sich die Kristallkeime dann durch Filtereffekte kumulieren und als Kristallisationszentren für Zementationsprozesse fungieren.

Nachgebildet und prognostiziert werden Scalingprozesse häufig mittels hydrogeochemischer Modellierungsprogramme, die vor allem auf der Temperatur- und Druckabhängigkeit von Lösungs- und Reaktionsgleichgewichten im Reservoir basieren (Bozau & van Berk 2013, Bozau et al. 2015). Weder in den Modellierungs- noch in den experimentellen Ansätzen wurde jedoch bislang berücksichtigt, dass der Ort der Kristallkeimbildung möglicherweise nicht mit demjenigen übereinstimmt, an dem später die Zementationsprozesse stattfinden.

1.2 Zielsetzung

Ziel ist es, ein grundlegendes Verständnis des Reservoirscalings in kluftdominierten Strömungssystemen sowie der Interaktion zwischen chemischer Zusammensetzung des Reservoirfluids und den physikalischen Randbedingungen des Reservoirs (z. B. Druck und Temperatur) in Abhängigkeit zum Reinjektions- und Förderdruck zu erlangen. Die Arbeitsergebnisse sollen die Prognosemöglichkeiten und die verfahrenstechnische Beherrschbarkeit des Reservoirscalings verbessern.

Der Fokus dieses Teilprojekts liegt auf der Ermittlung der grundlegenden Mechanismen der Bildung von Kristallkeimen bei der Nutzung geothermaler Fluide und deren Bedeutung für den Verschluss der entsprechenden Reservoirs. Insbesondere sollen folgende wissenschaftliche Fragen beantwortet werden:

- Wie verlaufen Bildung und Wachstum von Kristallkeimen in gesättigten geothermalen Wässern bei thermischer Entspannung?
- Welchen Einfluss auf diese Prozesse haben chemische Zusammensetzung der Lösung und physikalische Parameter, insbesondere Druck und Temperatur?
- Wie verhalten sich Kristallkeime, die in das Reservoir zurückgeleitet werden?
- Wie lassen sich gegebenenfalls Filterprozesse im Reservoir minimieren bzw. Gegenmaßnahmen ableiten (z. B. Unterdrückung der Keimbildung oder Vergrößerung der Kristallkeime in filtrierbare Dimensionen)?

Zu diesem Zweck werden zwei experimentelle Schwerpunkte gesetzt:

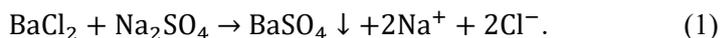
- Durchführung von Kristallisationsexperimenten an synthetischen und natürlichen geothermalen Wässern und Bestimmung von Kristallart, Morphologie und Größenverteilung von spontan gebildetem Kristallinat als Funktion von Temperatur und Chemiesus.
- Durchströmungsexperimente mit kristallkeimbelasteten Fluiden an ausgewählten, gut charakterisierten Gesteinen unter Reservoirbedingungen.

2. Kristallkeimbildungsprozesse in geothermischen Systemen

Zum besseren Verständnis von Bildung und Wachstum der Kristallkeime werden unter kontrollierten Bedingungen synthetische Lösungen und natürliche geothermale Wässer übersättigt und der kristalline Niederschlag hinsichtlich Zusammensetzung und Kristallart charakterisiert. Weiterhin werden die Größe und Morphologie der Kristallite bestimmt, da diese Parameter wesentlich potenzielle Filtereffekte beeinflussen. Andererseits reagiert gerade die Morphologie sehr empfindlich auf geringfügige Veränderungen in der chemischen Zusammensetzung der Lösungen. Dadurch eröffnen sich Wege, Morphologie und damit die Filterwirkung durch gezielten Zusatz von Additiven zu kontrollieren.

2.1 Fällungsexperimente durch Verrühren zweier synthetischer Lösungen

Die Ausfällung von Baryto-Cölestinen bei Temperaturabsenkung durch Energieentnahme ist für geothermische Anlagen bekannt und wurde als Scalingproblem auf Rohrwandungen thematisiert (Mundhenk 2013, Scheiber 2014). Folglich ist diese Mineralspezies ein interessanter Kandidat für Untersuchungen bezüglich des Scalings im Reservoir selbst. Die Übersättigung, die durch die Temperaturabsenkung in geothermalen Wässern zustande kommt, wird zu Anfang durch Verrühren zweier synthetischer Lösungen mit bidestilliertem Wasser und BaCl₂ bzw. Na₂SO₄ (jeweils 50 ml) erreicht. Entsprechend folgender Reaktion fällt Baryt aus:



Die hergestellten Suspensionen werden über Membranen aus Cellulosenitrat mit einer Porenweite von 0,45 µm filtriert und diese anschließend mit bidestilliertem Wasser gespült. Für weitere Untersuchungen wird mit einem Skalpell ein repräsentativer Teil aus der jeweiligen Membran inklusive ausgefallener Feststoffe entfernt und auf Probenträger geklebt, die mit einer 23 nm dicken Goldschicht besputtert werden. Weiterhin werden Versuchsreihen mit variierenden Parametern (Natriumchlorid-, Barium-, Strontium-, Calcium- und Schwefel-Konzentrationen, Kristallisationsdauer und Temperatur) durchgeführt, um die Einflüsse der unterschiedlichen Parameter auf die Kristallitgröße sowie Morphologie inklusive Tracht und Habitus mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie (REM) zu untersuchen. Die Veränderungen der chemischen Zusammensetzung werden durch Einsatz der energiedispersiven Analyse charakteristischer Röntgenstrahlung (EDX) am REM ermittelt.

2.2 Geplante Experimente und Untersuchungen

Im weiteren Verlauf sollen Fällungsexperimente durch Temperaturabsenkung durchgeführt werden. Dabei werden synthetische Wässer mit einer oder mehreren gelösten Komponenten (NaCl, CaCl₂, BaCl₂, SrCl₂, Na₂SO₄) kontrolliert abgekühlt, um die optimalen Bedingungen (Konzentrationen, Abkühlungsgeschwindigkeit, Temperatur) für die Herstellung von Wässern mit definierter Kristallkeimbelastung (Kristallgröße, Morphologie, Anzahl) zu ermitteln. In einem weiteren Schritt soll mit natürlichen geothermalen Wässern gearbeitet werden. Die kristallinen Niederschläge werden dann hinsichtlich ihrer Kristallart, Größe und Morphologie am REM untersucht. Die Eigenschaften sollen dann durch den gezielten Zusatz von Additiven kontrolliert werden. Das erlangte Wissen wird zur Arbeit an der Hochdruck-Hochtemperatur-Säulenapparatur eingesetzt, wo kristallkeimbelastete Wässer injiziert werden, um die Filtereffekte zu studieren.

3. Filterprozesse in geothermischen Systemen

3.1 Hochdruck-Hochtemperatur-Säulenapparatur

Um Filtereffekte untersuchen zu können, wird eine Hochdruck-Hochtemperatur-Säule eingesetzt (Abb. 1), die dem prinzipiellen Aufbau einer Geothermieanlage nachempfunden ist (Knuth et al. 2016).



Abb. 1: Hochdruck-Hochtemperatur-Säulenapparatur

Diese ermöglicht die Einstellung von Druck- und Temperaturverteilungen, wie sie innerhalb tiefer geothermischer Reservoire vorliegen. Zwei separat anliegende Heizspiralen erlauben dabei Einstellungen unterschiedlicher Temperaturen im Vorratsbehälter der Anlage sowie im Druckbehälter, in dem die Probe eingesetzt wird. Weiterhin ist der Einbau einer Kühlwendel für größere Temperaturdifferenzen und der Anschluss einer Dosierpumpe zur Injektion keimkristallbelasteter Fluide vorgesehen. Über ein Hilfsgas (z. B. Helium) und die Heizthermostate sind Drücke von bis zu 300 bar und Temperaturen bis zu 100 °C möglich. Eine Vakuumpumpe führt das Wasser im Kreislauf. Als Probenmaterial sind zwei unterschiedliche Sandsteine vorgesehen.

3.2 Probenmaterial

Zum einen handelt es sich dabei um den roten Remlinger Hartquarzsandstein, der stratigraphisch dem Plattensandstein aus der Oberen Buntsandstein-Formation zuzuordnen ist (Schwarzmeier, 1978). Laut Gesteinsansprache handelt es sich dabei um ein rotes, massig, homogenes, poröses siliziklastisches Sedimentgestein mit guter Sortierung im Feinsandbereich. Neben dem Hauptbestandteil Quarz, sind in geringen Mengen Tonminerale, Kalifeldspat und Glimmer sedimentbildend. Die Gesteinsmatrix setzt sich aus siltig bis toigem, kalk- und dolomitfreiem Bindemittel zusammen. Porositäten wurden im Mittel zu 13,1 % bei einer Standardabweichung von 0,7 % bestimmt (Schuster, 2017).

Neben dem Remlinger Sandstein wird der Flechtinger Buntsandstein genutzt, der stratigraphisch aus dem Rotliegenden des Unter- und Mittelperm stammt. Bei diesem handelt es sich um einen Sandstein aus größtenteils schlecht gerundeten Quarzkörnern, geringen Anteilen an Plagioklas und Kalifeldspat sowie einem diagenetischen Bindemittel aus Illit, Kalzit und Dolomit. Porositäten werden mit 5,8 % bis 8,3 % angegeben (Zang, 1997).

3.3 Probenvorbereitung

Die geplanten Experimente sollen an geklüftetem Probenmaterial vorgenommen werden, um möglichst realitätsnah an die Verhältnisse in hydrothermalen Geothermianlagen heranzureichen. Dazu werden die Sandsteine zunächst in Blöcke gesägt und anschließend gespalten, um so eine Kluft zu generieren. Aus diesen Blöcken werden dann Kerne gebohrt, die einen Durchmesser von 100 mm sowie eine Länge von 150 mm aufweisen. Auf diese Weise kann verhindert werden, dass an den Bohrkernen selbst Ausbrüche aufgrund des Spaltungsvorganges entstehen, was die Fließeigenschaften des eingebauten Bohrkernes maßgeblich beeinflussen kann und potentielle Fließwege am Bohrkernrand ermöglicht (Abb. 2a-d). Um diese möglichst dicht anliegend in den Probenbehälter der Hochdruck-Hochtemperatur-Säulenanlage einzubauen, um eine Durchströmung am Behälterrind zu unterbinden, oder zumindest zu minimieren, und die Kluft geschlossen zu halten, werden die Kerne zuvor in Schrumpfschläuche verpackt (Abb. 2e).

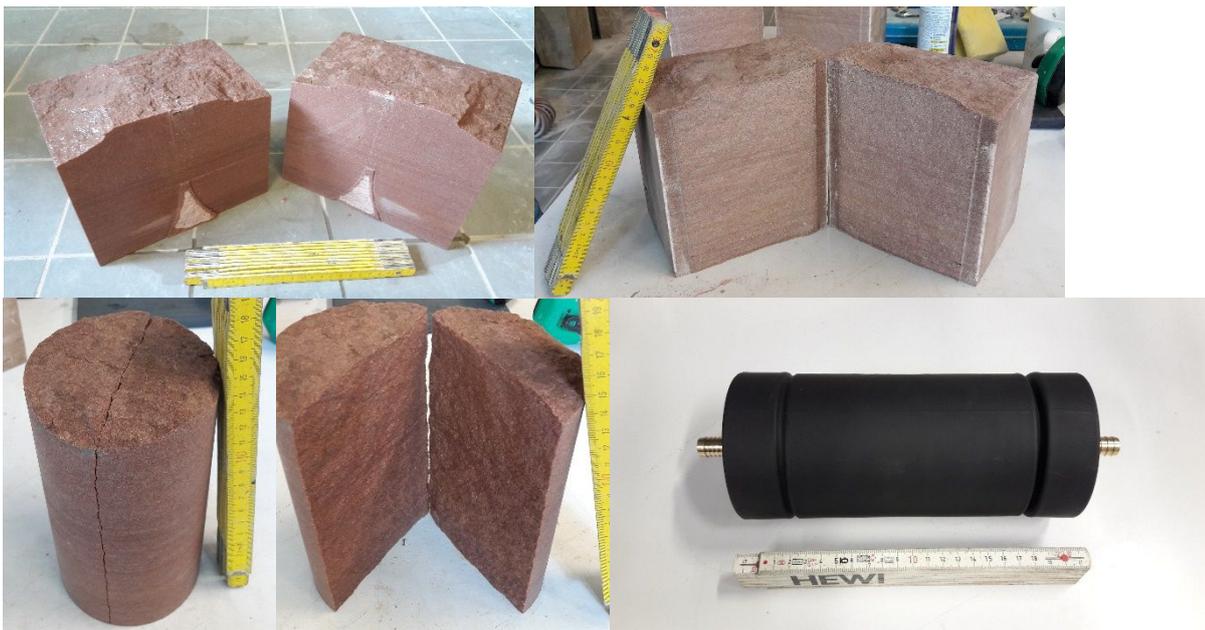


Abb. 2: a) oben links: gesägter Probenblock des Flechtinger Sandsteins; b) oben rechts: gespaltener Teilblock; c) unten links: gebohrter Kern (geschlossen); d) unten mittig: gebohrter Kern (offen); e) unten rechts: Kern im Schrumpfschlauch

Weiterhin wurden Gesteinsscheiben aus dem Probenmaterial gesägt, um Dünnschliffe herzustellen. Diese werden mit Hilfe der Polarisationsmikroskopie sowie Elektronenstrahlmikrosonde untersucht. Eine weitere Teilprobe wurde für Röntgendiffraktometrie- und Röntgenfluoreszenzuntersuchungen pulverisiert.

3.4 Geplante Experimente und Untersuchungen

Zunächst werden an ungeklüfteten Kernen beider Sandsteine (40 x 80 mm) Permeabilitätsversuche zur Bestimmung der Porosität durchgeführt. In der Hochdruck-Hochtemperatur-Säulenapparatur sollen dann zunächst im Rahmen einfacher Durchströmungsexperimente hydraulische Parameter und anschließend mittels Tracerversuchen sorptive, advective und dispersive Eigenschaften des Materials ermittelt werden.

Das System soll danach mit gesättigten Lösungen vorab festgelegter Mineralspezies, z. B. Bariumsulfat, durchströmt werden. Die Wahl der eingesetzten Mineralspezies orientiert sich dabei an den Scalings in realen Geothermiesystemen (Mundhenk, 2013). Anschließend werden abgekühlte und mit Kristallkeimen der gewählten Mineralspezies versetzte Lösungen in das System injiziert, was einer Reinjektion der abgekühlten Fluide im Rahmen der Energiegewinnung bei Geothermieanlagen nachempfunden sein soll. Dieser Schritt soll das Wachstum sowie die Ausfällungen der Minerale im System katalysieren und somit einen Filtereffekt durch Zementations- und Kristallwachstumsprozesse auf der Kluft im Gesteinskern generieren. Die so entstandenen Kristallite und Zemente werden dann mittels polarisationsoptischer Methoden, Rasterelektronenmikroskopie und Elektronenstrahlmikrosonde charakterisiert.

Zum besseren Verständnis von Bildung und Wachstum der Kristallkeime werden Versuchsreihen mit unterschiedlichen Parametern (u. a. NaCl-Sättigung, Barium- bzw. Strontiumkonzentration, Kristallisationsdauer) durchgeführt und rasterelektronenmikroskopisch sowie röntgenografisch untersucht.

Neben der Bestimmung hydraulischer Parameter mittels Durchströmungsexperimenten und der Charakterisierung der Kristallite, sollen die hydrochemische Prozesse im System anhand hydrogeochemischer Modellierung nachgebildet und mit den Ergebnissen der Experimente verglichen werden.

Quellenangaben

BOZAU, E., VAN BERK, W.: Hydrogeochemical modeling of deep formation water applied to geothermal energy production. *Procedia Earth and Planetary Science*, 7, (2013), 97–100. BOZAU, E., HÄUßLER, S., VAN BERK, W.: Hydrogeochemical modelling of corrosion effects and barite scaling in deep geothermal wells of the North German Basin using PHRREEQC and PHAST. *Geothermics*, 53, (2015), 540–547.

DEMIR, M.M. BABA, A., ATILLA, V. INALI, M.: Types of scaling in hyper saline geothermal system in northwest Turkey. *Geothermics*, 50, (2014), 1–9.

GUNNLAUGSSON, E.: Magnesium-silicate scaling in mixture of geothermal water and de-aerated fresh water in a district heating system. *Geothermics*, 18, (1989), 113–120.

KNUTH, C., WISOTZKY, F., WOHNLICH, S.: Hydrogeochemie geothermischer Reservoirs und deren Einfluss auf die technische Nutzbarkeit. – In: Banning, A., Wisotzky, F., Wohnlich, S. (Hrsg.): *Bochumer Grundwassertag 2016 – Grundwasser und Energie; Bochumer Geowissenschaftliche Arbeiten* 23, (2016) 46–57.

MUNDHENK, N., HUTTENLOCH, P., SANJUAN, B., KOHL, T., STEGER, H., ZORN, R.: Corrosion and scaling as interrelated phenomena in an operating geothermal power plant. *Corrosion Science*, 70, (2013), 17–28.

SCHEIBER, J., SEIBT, A., BIRNER, J., CUENOT, N., GENTER, A., MOECKES, W.: Barite scale control at the soultz-sous-forêts (france) egs site. *Proceedings 38th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering*, Stanford University, Stanford, California, (2014).

SCHUSTER, V.: Gekoppelte hydromechanische Thermo-Triaxialversuche an Sandsteinproben zur Bestimmung poreoelastischer Parameter. Unveröff. Master Thesis: TU Darmstadt, (2017).

SCHWARZMEIER, J.: Geologische Karte von Bayern 1:25.000 Erläuterungen zum Blatt Nr. 6024 Karlstadt und zum Blatt Nr. 6124 Remlingen. München: Bayerisches Geologisches Landesamt, (1978).

ZANG, A.: Akustische Emissionen beim Sprödbruch von Gestein. Habilitation Thesis, (Scientific Technical Report STR; 97/19), Potsdam: Deutsches GeoForschungszentrum GFZ, (1997).

Sascha Frank, Universitätsstraße 150, 44801 Bochum, sascha.frank@rub.de

Philipp Zuber, Universitätsstraße 150, 44801 Bochum, philipp.zuber@rub.de

Stefan Wohnlich, Universitätsstraße 150, 44801 Bochum, stefan.wohnlich@rub.de

Jürgen Schreuer, Universitätsstraße 150, 44801 Bochum, juergen.schreuer@rub.de