

**Simulation des Ausbreitungsverhaltens von Gasen und Salzwasser
in oberflächennahen Aquiferen nach einer Leckage
aus einem geologischen Speicher**

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

Dr. rer. nat.

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der

Christian-Albrechts-Universität zu Kiel

vorgelegt von

Carla E. Wiegers

Kiel, Oktober 2016

Gutachter:

Prof. Dr. Wolfgang Rabbel

Prof. Dr. Rainer Helmig

Tag der mündlichen Prüfung: 03.11.2017

Zum Druck genehmigt:

gez. (Prof. Dr. N. Oppelt), Dekan/in

Ich versichere an Eides statt, dass die vorliegende Abhandlung ausschließlich unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel entstanden ist und, abgesehen von der Beratung durch meinen akademischen Betreuer, nach Inhalt und Form meine eigene Arbeit darstellt. Des Weiteren habe ich weder diese noch eine ähnliche Arbeit an einer anderen Hochschule im Rahmen eines Prüfungsverfahrens vorgelegt oder veröffentlicht.

Kiel, Oktober 2016

.....

Carla E. Wiegers

Kurzfassung

Um der anthropogen beeinflussten Klimaveränderung entgegen zu wirken, sind Techniken zur Reduktion des globalen CO₂-Ausstoßes und der Einsatz erneuerbarer Energien notwendig. Die geologische Speicherung von Gasen kann in beiden Fällen einen Beitrag leisten: Zum einen als die permanente Speicherung von CO₂ und zum anderen als die Zwischenspeicherung von Gasen zur Energiespeicherung. Allerdings besteht ein Restrisiko, dass Gase und verdrängtes Salzwasser aus dem Speicher entweichen und über hydraulische Wegsamkeiten in oberflächennahe Schutzgutformationen wie etwa das nutzbare Grundwasser gelangen. Entsprechende Grundwasserleiter müssen einem Monitoring zur frühzeitigen Detektion einer potentiellen Leckage unterzogen werden, wie es bereits für die Speicherung von CO₂ gesetzlich verankert ist.

Die laterale Ausbreitung von CO₂ kann in einer Speicherformation eine im 100er km² Bereich große Fläche einnehmen. Da eine Migration von Gasen und/oder Salzwasser nicht notwendigerweise senkrecht bis an die Oberfläche stattfindet, vergrößert sich der potentiell gefährdete Bereich. Allerdings kann, abhängig von der Leckagerate, der durch die Leckage beeinflusste Bereich im Vergleich zu der gesamt gefährdeten Fläche klein sein. Daher muss in einem großen Bereich eine unter Umständen kleine Leckage entdeckt werden. Hier müssen geeignete Monitoringmethoden angewendet werden, die sensitiv genug sind, um eine Leckage innerhalb kurzer Zeiträume zu detektieren. Um solche Methoden evaluieren zu können, braucht man allerdings eine gute Vorstellung davon, wie ein betroffenes Areal aussehen könnte.

Dieser Aspekt wird in der vorliegenden Arbeit mit numerischen Modellen untersucht werden. Zunächst wird die Frage erörtert, welche Aquiferparameter die Ausbreitung der Gase CO₂, H₂, CH₄ und Luft – wobei der Schwerpunkt der Arbeit auf der Ausbreitung von CO₂ liegt – sowie von Salzwasser beeinflussen und wie sich ein durch diese Substanzen entstehender Impact räumlich und zeitlich ausbreitet.

Im ersten Schritt wird der Einfluss hydraulischer Aquiferparameter und der Leckagerate auf die Ausbreitung von gasförmigem CO₂ und Salzwasser mit Hilfe des Simulationsprogramms TOUGH2 durch eine Sensitivitätsanalyse untersucht. Im zweiten Schritt wird der Einfluss von Grundwasserströmung und Neigung des Aquifers auf die Ausbreitung der Substanzen betrachtet. Abschließend werden an die Realität angelehnte Standortmodelle verwendet, um den Einfluss der Morphologie von Grundwasserstauern und Grundwasserströmung auf die Entwicklung eines Gasphasenkörpers und einer Salzwasserfahne zu untersuchen.

Die Sensitivitätsanalysen zeigen, dass für die Ausbreitung der Gase diejenigen Parameter von Bedeutung sind, die einen Einfluss auf das Gasvolumen haben. Konkret sind dies, in ihrer Sensitivität absteigend: die Leckagerate, die Porosität und die Tiefe des Aquifers; hinsichtlich des Salzwassers sind es die Intrusionsrate, sowie Permeabilität und Porosität.

Die zweite Untersuchung zum Einfluss von Aquiferneigung und Grundwasserströmung hat gezeigt, dass für die Ausbreitung des gasförmigen CO₂ die Morphologie der hangenden Grundwasserstauers den Transport dominiert. Der CO₂ Gasphasenkörper migriert unterhalb eines Grundwasserstauers dem steilsten Gradienten folgend aufwärts. Die Grundwasserströmung bewirkt, dass sich mehr CO₂ im Grundwasser lösen kann und mit der Grundwasserströmung transportiert wird, so dass sich eine Fahne gelösten CO₂s bildet. Sind entsprechend die Richtung der Grundwasserströmung und das Einfallen des Stauers unterschiedlich, migrieren gelöstes und gasförmiges CO₂ entsprechend in unterschiedliche Richtungen, was zu komplexen Formen des Impaktbereiches führen kann. Für die Ausbreitung des Salzwassers zeigt sich, dass bei Anwesenheit von Grundwasserströmung die Dichteströmung und damit die Morphologie der Aquiferbasis zu vernachlässigen ist.

In einem weiteren großräumigen Standortmodell wird der Einfluss geologischer Strukturen auf das Ausbreitungsverhalten von Luft betrachtet. Aus den Ergebnissen lassen sich drei Typ-Szenarien ableiten: Gasmigration unter einer hydraulischen Sperre, Gasmigration durch eine Rinnestruktur und Gasmigration entlang einer Salzstruktur. Diese Szenarien bilden die Datengrundlage für die numerische Simulation von geophysikalischen Monitoring Methoden.

Abstract

To counter the anthropogenically influenced climate change, the use of renewable energies and methods to reduce the global CO₂ output are required. Underground geological storage of gases can contribute to these aims. CO₂ can be stored permanently and other gases like hydrogen, methane or compressed air can be used to buffer energy. But there is a risk remaining that gases leak from the reservoir into protected goods such as shallow potable aquifers or that saline water is pressed upwards. Therefore these aquifers have to be monitored for an early detection of leakages, as laws dealing with underground geological storage of CO₂ are already insisting.

The lateral expansion of gases in a storage formation can cover an area up to 100 km². Since CO₂ and/or saltwater will not necessarily migrate vertically on a direct path to the surface, one can assume that the potentially affected area is even larger. On the other hand, the impact of a leakage can be rather small, depending on the leakage rate. Hence, a probably small leakage has to be discovered on a large area. Suited monitoring methods which are sensitive enough to detect leakages in a timely manner have to be used. To evaluate such methods, an understanding of the impact of such leakages is necessary.

The present study aims to investigate this aspect using numerical models. It is discussed, which parameters influence the spreading of gases – main focus of this work is on CO₂ – and salt water and how such an impact develops over time and space.

In the first part of this study, the influence of hydraulic aquifer parameters and the leakage rate on the spreading of gaseous CO₂ and salt water was examined using the simulation program TOUGH2 by means of a local sensitivity analysis. In the second part, the influence of groundwater flow and slope of the aquifer on the spreading of the substances was determined. Finally, a reality based site scale model was used to study the influence of the morphology of aquicludes and ground water flow on the development of gas phase bodies, the dissolved CO₂ and a salt water plume.

The sensitivity analysis shows that for the spreading of gases those parameters are essential which influence the gas volume. In detail these are (in descending order of their sensitivity): the leakage rate, the porosity and the depth of the aquifer. Regarding the salt water, the respective parameters are rate of intrusion as well as permeability and porosity.

The study on the influence of aquifer slope and groundwater flow shows that the spreading and transport of gases is dominated by the morphology of aquicludes on top of the aquifer. A gas

phase body which migrates below an aquiclude follows the steepest gradient upwards. The groundwater flow enhances the mass of CO₂ dissolved in groundwater. Dissolved gases are transported with the groundwater flow and form a plume. If the direction of groundwater flow and inclination of the aquiclude differ, dissolved and gaseous CO₂ migrate in different directions. This can lead to complex impact patterns. For salt water it has been found that with occurrence of ground water flow the density of saline water and thus the morphology of the aquifer is negligible for the spreading of the plume.

For numerical site models three typical scenarios are defined: gas migration underneath a hydraulic barrier, into a subglacial buried valley and gas migration in the vicinity of a salt dome. The simulations presented from the basis for additional studies to test geophysical monitoring methods with numerical simulations.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	20
1.1 Klimawandel.....	20
1.2 Nutzung des geologischen Untergrundes zur Gasspeicherung.....	21
1.3 Speicherung von CO ₂ im geologischen Untergrund.....	22
1.4 Energiespeicherung im geologischen Untergrund.....	25
1.5 Leckagen.....	25
1.5.1 Gasleckagen	25
1.5.2 Salzwasserleckagen	27
1.6 Einfluss von Fluidleckagen auf oberflächennahe Grundwasserleiter.....	28
1.6.1 Größe eines Impakts.....	28
1.7 Potentielle geochemische Veränderungen des Grundwassers durch Leckagefluide.	29
1.8 Monitoring von Leckagen in oberflächennahen Schutzgutformationen	31
1.9 Fragestellung dieser Arbeit.....	33
2. Theoretische Grundlagen	35
2.1 Mehrphasenströmung	35
2.2 Der Kapillardruck	36
2.3 Relative Permeabilität.....	38
2.4 Dichteströmung	39
2.5 Verwendete Software	40
3. Methoden.....	41
3.1 Konzeptionelles Modell.....	41
3.2 Sensitivitäten von Aquiferparametern auf die Gasausbreitung	43
3.2.1 Gasleckagen	43
3.2.2 Salzwasserleckagen	44
3.3 Einfluss der räumlichen Diskretisierung auf Simulationsergebnisse.....	45
3.4 Einfluss von Grundwasserströmung und Aquiferneigung auf Leckagefluide.....	45
3.4.1 Einfluss auf die Ausbreitung von gasförmigen CO ₂	45
3.4.2 Einfluss auf die Ausbreitung von gasförmigem und gelöstem CO ₂	47
3.5 Einfluss auf die Ausbreitung von Salzwasser.....	48
3.6 Forschungsstandort CLEAN.....	49
3.6.1 Standortbeschreibung	49
3.6.2 Strömungsmodell	53

3.6.3	Ausbreitung von Leckagefluiden am CLEAN-Standort	55
3.6.4	Einfluss der Morphologie des hangenden Stauers auf die Gasausbreitung	56
3.6.5	Einfluss der Morphologie des liegenden Grundwasserstauers und der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung von Salzwasser	57
3.7	Gasausbreitung an einem norddeutschen Beispielstandort	58
3.7.1	Standortbeschreibung	58
3.7.2	Numerisches Modell	60
4.	Ergebnisse und Interpretation.....	63
4.1	Parameter und Sensitivitätsstudie.....	63
4.1.1	Basiszenario	63
4.1.2	Variation der Leckagerate	64
4.1.3	Einfluss des Aquiferdrucks	66
4.1.4	Einfluss der Temperatur	66
4.1.5	Einfluss der effektiven Porosität	67
4.1.6	Einfluss der Horizontale Permeabilität	67
4.1.7	Sensitivitätsanalyse	69
4.1.8	Vergleich der Gase Kohlenstoffdioxid, Luft*, Wasserstoff und Methan	70
4.2	Auswirkung der räumlichen Diskretisierung auf die Ausbreitung der Gasphase	71
4.3	Salzwasserleckagen	72
4.3.1	Einfluss der Aquifer- und Leckageparameter	72
4.3.2	Sensitivitätsanalyse zur Salzwasserausbreitung.....	74
4.4	Einfluss von Grundwasserströmung und Aquiferneigung auf die Ausbreitung von gelöstem und gasförmigen CO ₂ sowie von Salzwasser.....	76
4.4.2	Einfluss der Neigung eines hangenden Grundwasserstauers	77
4.4.3	Einfluss der Grundwasserströmung	79
4.4.4	Einfluss des Winkels zwischen Grundwasserströmungsrichtung und Aquiferneigung auf die Ausbreitung einer Gasphase unterhalb eines hangenden Grundwasserstauers.....	81
4.4.5	Einfluss von Grundwasserströmung zwischen 0,1 m/Tag und 0.5 m/Tag auf die Ausbreitung einer Gasphase.....	86

4.4.6	Einfluss der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung einer Salzwasserleckage	87
4.4.7	Variation der Aquiferneigung und Variation der Salinität des Intrusionswassers bei einer Aquiferneigung von 3°	89
4.4.8	Einfluss der Kombination von Grundwasserströmungsgeschwindigkeit und Neigungsrichtung des Aquifers	89
4.5	Grundwasserströmungsmodell „CLEAN-Standort“	90
4.6	CLEAN-Standortszenarien zur Ausbreitung von gasförmigen und gelösten CO ₂	92
4.6.1	Gasausbreitung an unterschiedlichen Leckagepositionen	92
4.6.2	Einfluss der Morphologie des hangenden Grundwasserleiters und der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung von gelöstem und gasförmigen CO ₂ am Standort CLEAN	94
4.7	Ausbreitung einer Salzwasserleckage am Standort CLEAN	95
4.7.1	Leckage aus den unteren Braunkohlesanden	95
4.7.2	Leckage aus dem unteren Buntsandstein	96
4.8	Gasausbreitung in realistischen geologischen Strukturen	97
4.8.1	Leckageszenario 2	98
4.8.2	Leckageszenario 8	99
4.8.3	Migration eines Gases unterhalb des Hamburger Tons	100
4.8.4	Migration eines Gases durch eine Rinnenstruktur	101
4.8.5	Migration und Akkumulation eines Gasphasenkörpers im Nahbereich von Salzstrukturen.....	102
5.	Diskussion und Fazit	104
5.1	Ausbreitungsverhalten von gasförmigem CO ₂ und der daraus entstehende Impakt im Grundwasserleiter	104
5.2	Vergleich des Ausbreitungsverhaltens unterschiedlicher Gase.	106
5.3	Standortsimulationen	107
5.4	Ausbreitungsverhalten von Salzwasser und der daraus entstehende Impakt im Grundwasserleiter	108
5.5	Impaktbereich resultierend aus der Kombination der Impaktbereiche von CO ₂ Leckagen und Salzwasserintrusionen	109
5.6	Belastbarkeit numerischer Modelle	111
5.7	Monitoring:	112

6. Literatur.....	114
7. Liste der Veröffentlichungen	121
Danksagung	122

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1-1: Gemessene mittlere Temperaturentwicklung bis 2000 und Prognose anhand unterschiedlicher Klimamodelle bis 2100 (IPCC, 2005). Das EU-Ziel der Begrenzung der Temperaturerhöhung auf 2°C ist nur mit effektiven Gegenmaßnahmen zu erreichen (Rahmsdorf & Schellnhuber, 2012)	20
Abb. 1-2: Schemaskizze CCS: In Kraftwerken wird das CO ₂ von anderen Gasen getrennt. Nach einer Verdichtung des Gases zur Minderung des Volumens wird es zu einer geologischen Speicherstätte transportiert und dort verpresst (IPCC, 2005).....	23
Abb. 1-3: Speichermechanismen im Reservoir. Mit zunehmender Zeit steigt die Sicherheit des Speichers (IPCC, 2005).....	24
Abb. 1-4: Leckagepfade von CCS in oberflächennahe Schutzgutformationen (Zheng et al., 2009).....	27
Abb. 1-5: Schemaskizze zur vertikalen Ausbreitung von Salzwasser in hangende Grundwasserleiter.....	28
Abb. 1-6: Größenabschätzung der potentiell gefährdeten Fläche durch einen Störfall in CCS Betrieb (Schäfer, unveröffentlicht)	29
Abb. 1-7: Geochemische Wechselwirkungen durch die Intrusion von O ₂ , H ₂ , CH ₄ und salzhaltigem Wasser in einen Grundwasserleiter (Schäfer, D; unveröffentlicht).....	30
Abb. 2-1: Kapillardruck-Sättigungsbeziehung nach Brooks & Corey und van Genuchten (Helmig, 1997).....	37
Abb. 2-2: Verlauf der relativen Permeabilität in Abhängigkeit der Korngröße (Helmig, 1997).....	38
Abb. 3-1: Schematische Darstellung der Modellgeometrie. Das Radialsymmetrische Modell hat einen Radius von 500 m und eine Mächtigkeit von 10 m. An der Außenseite des Zylinders befindet sich eine feste Druckrandbedingung. An der Modellbasis im Zentrum des Modells befindet sich die Gasleckage (Wiegiers et al. 2012).....	44
Abb. 3-2: Modelldiskretisierung horizontal (links) und vertikal (rechts) (nach Büttner, 2012).....	46
Abb. 3-3: Schematische Darstellung des konzeptionellen Modells. 1) Draufsicht auf das Modellgebiet mit Leckage und Strömungsrichtung. 2) Querprofil des Modellgebiets mit der Leckage und dem Neigungswinkel α 3) Draufsicht auf das Modellgebiet mit Leckage, Strömungsrichtung und Aquiferneigung.....	46
Abb. 3-4: Definition des Einflussbereichs in einem Grundwasserleiter durch eine Leckage	47
Abb. 3-5: Umgebungskarte mit der Lage des Untersuchungsgebiets (roter Kasten) (Schäfer et al. 2012).....	49
Abb. 3-6: Modellgebiet (violett umrahmt) mit Grundwassermessstellen (B1-B12), (nach Schäfer et al. 2012).....	50
Abb. 3-7: Bohrprofile, Profilschnitte und Gebietsgrenze des CLEAN-Untersuchungsgebiets mit den Schichten L1, L2, L3 und L4 (nach Schäfer et al. 2012).....	51
Abb. 3-8: Wasserstände in den Grundwassermessstellen an sechs Stichtagsmessungen (Schäfer et al. 2012).....	52
Abb. 3-9: Grundwasserzusammensetzung an den 6 Stichtagen am Forschungsstandort CLEAN.....	53
Abb. 3-10: Konzeptionelle Skizze des Strömungsmodells. Mit den Schichten L1 bis L4. Die rot markierten Flächen kennzeichnen Dirichlet-Randbedingungen: feste Piezometerhöhe. Die blaue Fläche markiert eine Neumann-Randbedingung zur Darstellung der Grundwasserneubildung.....	54
Abb. 3-11: Morphologie der Aquiferoberkante der Schicht L4, des CLEAN-Standortmodells, mit der Grundwasserströmungsrichtung und der Lage des Profilschnittes A-B (Wiegiers et al. 2012).....	55
Abb. 3-12: Position der CO ₂ Gasleckagen A, B, C, und F (nach Wiegiers et al. 2012).....	56
Abb. 3-13: Vorläufiges Ergebnis mit der Position der CO ₂ Gasleckage und der Antiklinalstruktur im Längsprofil parallel zur Grundwasserströmung durch das CLEAN Modellgebiet (Wiegiers et al., 2012).....	57
Abb. 3-14: Position der Salzwasserleckage auf der Aquiferbasis im CLEAN Modellgebiet, sowie die Position der Beobachtungsmessstellen OB1-3 (Wiegiers & Schäfer, 2015).....	57

Abb. 3-15: Charakteristische geologische Struktur in Norddeutschland, mit Salzstruktur, den tertiären Schichtfolgen und Rinnenstrukturen. Hydraulisch undurchlässige Ton und Mergelschichten in grau, hydraulisch durchlässige Schichten in hellgrau (Gabriel et al. 2003).....	58
Abb. 3-16: Geostruktur des Untergrundes am Standort Elmshorn (al Hagrey et al. 2016).....	59
Abb. 3-17: Position der Leckagen 1 bis 9 am Standort Elmshorn.....	61
Abb. 4-1: Schematische Darstellung der Modellgeometrie und der Verteilung des Gases. Das Gas steigt dichtegetrieben aufwärts, sammelt sich unterhalb des Grundwasserstauers und breitet sich von dort ausgehend radialsymmetrisch aus (nach Wiegers et al. 2012).....	64
Abb. 4-2: Radius des Gasphasenkörpers über die Zeit in Abhängigkeit der Leckagerate (Wiegers et al, 2012)	65
Abb. 4-3: Radius des Gasphasenkörpers über die Zeit in Abhängigkeit der der Aquifertiefe (a) und der Aquifer-temperatur (b) (Wiegers et al., 2012).....	66
Abb. 4-4: Radius des Gasphasenkörpers über die Zeit in Abhängigkeit der Porosität (a) und der Permeabilität (b) (Wiegers et al., 2012).....	67
Abb. 4-5: Sensitivitätsanalysen zu den Gasen H ₂ , Luft*, CH ₄ und CO ₂ im Vergleich.....	69
Abb. 4-6: Radius des Gasphasenkörpers, maximale Gassättigung (Primärachse) und Simulationszeit (Sekundärachse) in Abhängigkeit der Zellgröße.....	72
Abb. 4-7: Einfluss der a) Leckagerate, b) Salzkonzentration, c) Permeabilität und d) effektiven Porosität auf den Radius des entstehenden Salzwasserkörpers einer Salzwasserintrusion (Wiegers & Schäfer, 2015).....	73
Abb. 4-8: Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse über das gesamte Parameterspektrum (vergl. Tab. 5-1) (Wiegers & Schäfer, 2015).....	74
Abb. 4-9: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren (a) und 1 Jahr (b).....	76
Abb. 4-10: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren (a) und 1 Jahr (b).....	77
Abb. 4-11: Fläche der CO ₂ Gasphasenkörper an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren, bei 0,5° Neigung (a), bei 1° Neigung (b) und 2° Neigung (c).....	77
Abb.4-12: Ausbreitung der Gasphasenkörper über ein Jahr bei unterschiedlichen Neigungswinkeln des hangenden Grundwasserstauers.....	78
Abb. 4-13: X- (links) und Y-Erstreckung (rechts) des Gasphasenkörpers über die Zeit bei unterschiedlichen Neigungswinkeln des hangenden Grundwasserstauers.....	78
Abb. 4-14: Entwicklung der maximal gemessenen Gassättigung senkrecht über der Leckage in Abhängigkeit des Neigungswinkels des hangenden Grundwasserstauers.....	79
Abb. 4-15: Fläche der CO ₂ Gasphasenkörper an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren, bei 0,5° Neigung (a), bei 1° Neigung (b) und 2° Neigung (c).....	80
Abb. 4-16: Fläche des CO ₂ -Gasphasenkörpers (links) und der Fahne des CO ₂ gel (rechts) unter dem hangenden Grundwasserstauer nach einem Jahr, bei variierten Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten.....	80
Abb. 4-17: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,0m/Tag (a), 0,03m/Tag (b) und 0,07m/Tag (c).....	81
Abb. 4-18: Fläche des CO ₂ -Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (a), 0,05 m/Tag (b) und 0,07 m/Tag (c). Fläche der CO ₂ Fahne an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr Simulationszeit, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (d), 0,05 m/Tag (e), 0,07 m/Tag (f).....	82

Abb. 4-19: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01m/Tag (a), 0,03m/Tag (b), 0,05m/Tag (c) und 0,07m/Tag (d). Ausdehnung der CO ₂ Fahne an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01m/Tag (e), 0,03m/Tag (f), 0,05m/Tag (g) und 0,07m/Tag (h).....	83
Abb. 4-20: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers (links) und der CO ₂ gel Fahne (rechts) unterhalb des hangenden Grundwasserstauers bei variierten Strömungsgeschwindigkeiten	84
Abb. 4-21: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers (links) und der CO ₂ gel Fahne (rechts) unterhalb des hangenden Grundwasserstauers bei variierten Strömungsgeschwindigkeiten.....	85
Abb. 4-22: Fläche des CO ₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (a), 0,05 m/Tag (b) und 0,07 m/Tag (c) und gleichgerichteter Aquiferneigung.....	85
Abb. 4-23: Änderung der Ausbreitung der CO ₂ -Gasphasenkörper (links) und der Fahne des gelösten CO ₂ mit Änderung der Grundwasserströmung (nach Schäfer et al. 2013).....	86
Abb. 4-24: Veränderung der Fläche des gasförmigen CO ₂ -Gasphasenkörpers und der Fahne des gelösten CO ₂ unterhalb einer Deckschicht in einem gespannten Aquifer nach einem Jahr Leckagezeit in Abhängigkeit der Grundwasserströmung (nach Schäfer et al. 2013).....	87
Abb. 4-25: Draufsicht auf den Salzwasserkörper nach 120 Tagen Simulationszeit mit Grundwasserströmungsrichtung und Aquiferneigung. Zunahme der Fläche des Salzwasserkörpers über die Zeit unter Einfluss von b) Grundwasserströmung, c) Aquiferneigung, d) Aquiferneigung von 1° und variiertes Salzkonzentration, e) Salzkonzentration und f) Kombination aus Grundwasserströmungsrichtung und Aquiferneigung (Wieggers & Schäfer, 2015).....	88
Abb. 4-26: Verteilung der kalibrierten kf-Werte im Grundwasserleiter L4 (links) und im Grundwasserstauer L2 (rechts).....	90
Abb. 4-27: Vergleich zwischen den gemessenen Wasserstände und den simulierten Wasserständen im Grundwasserleiter L4.....	91
Abb. 4-28: Kalibriertes Strömungsfeld mit Isohypsen und Bahnlinien des CLEAN-Untersuchungsgebiets im Grundwasserleiter L4.....	92
Abb. 4-29: Verteilung des gasförmigen CO ₂ nach einer Leckagezeit von 3 Jahren und b) nach 10 Jahren. c) Partieldrücke des gelösten CO ₂ nach 3 Jahren und d) nach 10 Jahren (unten rechts) Leckagezeit. Die Leckagerate beträgt in allen Simulationen 1,16×10 ⁻² kg/s, 15-fach überhöht (nach Wieggers et al., 2012).....	93
Abb. 4-30: Position der CO ₂ -Gasleckage und der Antiklinal-Struktur im Längsprofil parallel zur Grundwasserströmung durch das CLEAN-Modellgebiet (Wieggers et al., 2012).....	94
Abb. 4-31: Ausbreitung von gasförmigen (links) und gelösten (rechts) CO ₂ im CLEAN-Modellgebiet (Wieggers et al., 2012).....	95
Abb. 4-32: Draufsicht auf das Modellgebiet mit den Isochronen der Konzentration vom 250 mg/l NaCl für die Intrusion des Wassers aus dem Braunkohlesandaquifer a) und dem Wasser aus der Bundsandsteinformation d). Tiefenprofile an den Beobachtungsbrunnen Braunkohlesand B1 und B2 (b) und c)), sowie an den Beobachtungsbrunnen Bundsandstein B1 und B2 (e) und f)) (Wieggers & Schäfer, 2015).....	96
Abb. 4-33: Leckagezenario 2: Zeitliche Entwicklung der Gasleckage von der Basis der unteren Braunkohlesande unterhalb des Hamburger Tons und durch die Ellerbeckerrinne bis in die Atmosphäre (Chung, 2015).....	98
Abb. 4-34: Leckageszenario 8: Luft* Migration von den unteren Braunkohlesanden bis ins Quartär.....	99
Abb. 4-35: Leckageszenarien 3,5,6 und 9 mit Ausbreitung unterhalb des Hamburger Tons (Chung, 2015).....	101
Abb. 4-36: Leckageszenarien 4 und 7 mit Ausbreitung unterhalb des Hamburger Tons und durch die Ellerbeckerrinne (Chung, 2015)	102
Abb. 4-37: Gasmigration im Nahbereich von Salzstöcken (Chung, 2015)	103

Abb. 5-1: Schematische Darstellung der potentiellen Ausbreitung von Salzwasser, gasförmigem und gelöstem CO₂ mit zunehmender Komplexität a) Szenario 1: Leckage von CO₂ und Salzwasser ohne Grundwasserströmung und Neigung des Aquifers. b) Szenario 2: Leckage von CO₂ und Salzwasser mit Grundwasserströmung und ohne Neigung des Aquifers. c) Szenario 3: Leckage von CO₂ und Salzwasser mit Grundwasserströmung und Aquiferneigung..... **110**

Tabellenverzeichnis

Tab. 2-1: Verwendete TOUGH 2 EOS.....	40
Tab. 3-1: Parameter für Kapillardruck Sättigungsbeziehungen und die relative Permeabilität nach van Genuchten (van Genuchten, 1980 und Esposito und Benson, 2012) und geologische Parameter des Sediments (z.B. Schäfer et al. 2012).....	42
Tab. 3-2: Hydraulische Parameter, verwendet im Standortmodell Elmshorn (al Hagrey et al. 2016).....	60
Tab. 3-3: Zusammenfassung der Szenarien.....	62
Tab. 4-1: Ergebnisse der Sensitivitätsanalysen und die Kompressibilität der Gase Wasserstoff, Luft*, Methan und CO ₂	70
Tab. 4-2: Gassättigungen und Flächen der Leckageszenarien 3,4,6 und 9.....	100

1. Einleitung

1.1 Klimawandel

Seit dem Beginn der Industrialisierung um 1850 ist die globale Durchschnittstemperatur, gemittelt über ein globales Netzwerk von Messstationen, um mehr als $0,7^{\circ}\text{C}$ angestiegen (Rahmstorf & Schellnhuber, 2012). Der Anstieg der mittleren globalen Temperatur spiegelt sich ebenfalls indirekt in anderen Trends wieder wie etwa dem Abschmelzen von Eismassen, dem Anstieg des Meeresspiegels oder der Verschiebung der Klimazonen (Rahmstorf & Schellnhuber, 2012). Der Grund für die Klimaerwärmung ist der Anstieg der anthropogenen Emission von Treibhausgasen in die Atmosphäre durch die Nutzung fossiler Brennstoffe und der damit verbundene Treibhauseffekt (IPCC, 2005). Setzt sich dieser Trend fort, könnte es bis zum Jahr 2100 zu einem Temperaturanstieg von 1° - 6°C kommen, abhängig von den Annahmen über den zukünftigen Ausstoß von Treibhausgasen, die die Grundlage der Szenarien bilden (Abb. 1-1).

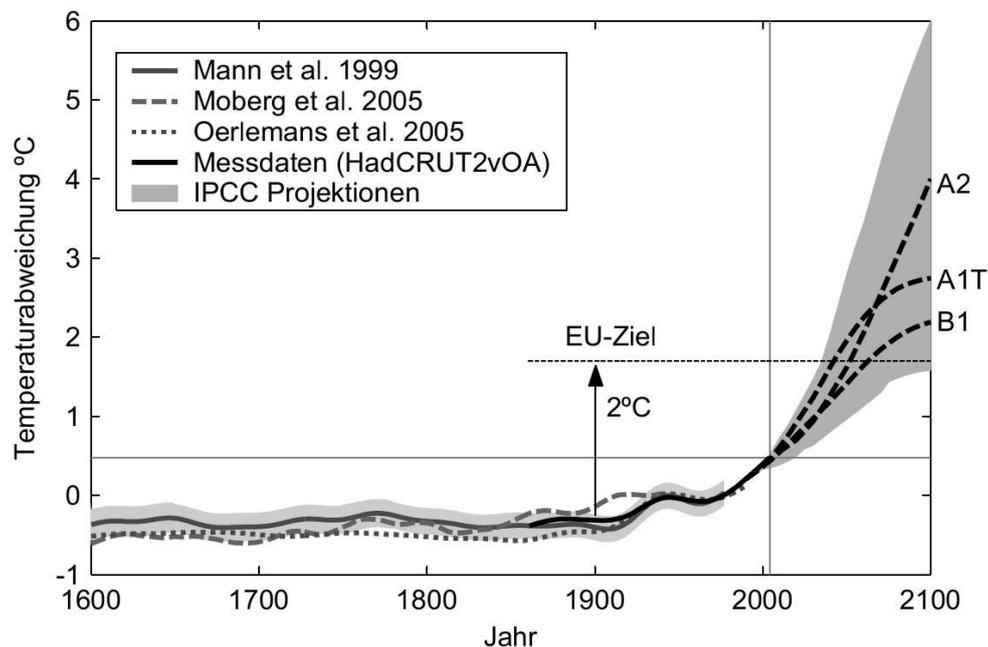


Abb. 1-1: Gemessene mittlere Temperaturentwicklung bis 2000 und Prognose anhand unterschiedlicher Klimamodelle bis 2100 (IPCC, 2005). Das EU-Ziel der Begrenzung der Temperaturerhöhung auf 2°C ist nur mit effektiven Gegenmaßnahmen zu erreichen (Rahmstorf & Schellnhuber, 2012)

Mögliche Folgen einer weiteren Erwärmung wären unter anderem der Meeresspiegelanstieg, die Zunahme von Stürmen, Starkregenereignisse oder Trockenheit mit entsprechenden sozio-ökonomischen Folgen (IPCC, 2005).

Sogenannte klimawirksame Gase, die die globale Erwärmung verursachen, sind vor allem Methan (CH₄), Kohlenstoffdioxid (CO₂) und Stickoxide (NO_x). Das CO₂ trägt dabei mit rund 60 % zum Treibhauseffekt bei, da es in großen Mengen anthropogen bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe und bei der Verarbeitung von Rohstoffen wie etwa Zement in die Atmosphäre abgegeben wird (Rahmstorf & Schellnhuber, 2012).

Um das im Protokoll von Kyoto (z.B.: Oberthür & Ott, 2000) vereinbarte Ziel zu erreichen, den Temperaturanstieg auf 2 °C zu begrenzen, müsste die Konzentration des CO₂ in der Atmosphäre auf einem Wert von unter 350 ppm stabilisiert werden (Rahmstorf & Schellnhuber, 2012; IPCC, 2005). Die Konzentration des CO₂ in der Atmosphäre ist seit der Industrialisierung von etwa 250 ppm (1850) auf bereits 406 ppm (Stand März 2016) angestiegen (Keeling et al., 2005).

In dem 2020 in Kraft tretenden Pariser Klimavertrag (Dezember 2015) haben 195 Staaten unterschrieben, Maßnahmen umzusetzen, um einen Temperaturanstieg auf 1.5 °C zu begrenzen. Der Vertrag sieht unter anderem vor, dass in der zweiten Hälfte des 21. Jahrhunderts ein Gleichgewicht im Kohlenstoffkreislauf zwischen anthropogen ausgestoßenem CO₂ und natürlichen und anthropogenen Kohlenstoffsinken hergestellt werden soll.

1.2 Nutzung des geologischen Untergrundes zur Gasspeicherung

Zur Verringerung des anthropogenen CO₂-Ausstoßes in die Atmosphäre werden verschiedene Handlungsstrategien diskutiert, die im Rahmen der Energiewende zum Einsatz kommen sollten. Die Nutzung des tiefen geologischen Untergrundes ist dabei eine Möglichkeit, um aus Industrieanlagen abgeschiedenes CO₂ geologisch zu speichern: Carbon Capture and Storage (CCS) dient dabei als Brückentechnologie, bis keine fossilen Brennstoffe zur Erzeugung von Energie mehr verwendet werden (Scott et al., 2013).

Bei der Erzeugung von Energie durch nachhaltige Verfahren wie etwa Windkraft oder Solarenergie, ist die Energieproduktion nicht mehr wie bei konventionellen Kraftwerken steuerbar. Ihre Produktion von Strom ist wetterabhängig und findet nicht kontinuierlich statt. Damit lässt sich die Stromproduktion nicht an den Strombedarf anpassen. Daher wird diskutiert, dass sekundäre Energieträger in Form von Gasen im geologischen Untergrund gespeichert werden und die Energieversorgung so dem Energiebedarf angepasst werden kann (Bauer et al., 2013).

1.3 Speicherung von CO₂ im geologischen Untergrund

Die Speicherung von anthropogen produziertem CO₂ im geologischen Untergrund enthält drei Hauptschritte (IPCC, 2005). Zunächst wird das CO₂ aus den Abgasen industrieller Anlagen von anderen Rauchgasen getrennt und dann verflüssigt, um das Volumen zu reduzieren. Danach erfolgt der Transport des CO₂ zur Speicherstätte. Dort wird es in einen überkritischen Zustand gebracht und in den Untergrund injiziert. Das CO₂ soll nach Möglichkeit in Tiefen über 800 m im Untergrund gespeichert werden. Unter diesen Druck- und Temperaturbedingungen von mehr als 71 bar und 31 °C ist das CO₂ im überkritischen Zustand, wodurch das Volumen des CO₂ gegenüber dem des gasförmigen Zustandes um das 270-fache verringert wird; es kann mehr CO₂ gespeichert werden (IPCC, 2005).

Für eine terrestrische geologische Speicherung von CO₂ kommen unterschiedliche Möglichkeiten in Frage. Die wichtigsten sind:

Leergeförderte Öl- und Gas-Reservoirs

Der Vorteil besteht hier darin, dass diese Reservoirs sich über geologische Zeitskalen bereits als Speicher für Öl oder Gas bewährt haben. In der leergeförderten Lagerstätte herrscht im Vergleich zu dem umliegenden Gebirge eher Unterdruck. Damit kommt es bei einer Speicherung zunächst nicht zu einem Überdruck im Reservoir, durch den Masse aus der Speicherstätte verdrängt werden könnte (IPCC, 2005).

Enhanced Oil and Gas recovery (EOR respektive EGR)

Hier wird das CO₂ verwendet, um Öl oder Gas mit Druck aus dem Untergrund zu pressen. So kann vor allem Öl oder Gas gefördert werden, das bei normaler Förderung in der Lagerstätte verbleiben würden. Allerdings ist bei EOR, respektive EGR, ein Überdruck bei der Verpressung des CO₂ notwendig, was zu einer mechanischen Beanspruchung des Deckgebirges und damit zu hydraulischen Wegsamkeiten führen könnte (Leung et al., 2014).

Saline Formationen

Tiefe saline Aquifere sind als Speicherstätten für CO₂ interessant: Sie liegen in Tiefen, in denen mit vorherrschenden Druck- und Temperaturbedingungen das CO₂ überkritisch ist. Zudem ist das in diesen Aquiferen vorhandene Wasser aufgrund seiner hohen Salinität wirtschaftlich nicht relevant. Auch hier wäre eine Verpressung des CO₂ mit Überdruck erforderlich, was ebenfalls

zu einer Überbeanspruchung des Deckgebirges führen könnte. Der im Speicher erzeugte Druck breitet sich über das Reservoir hinaus aus, kann Wassermassen in Richtung Erdoberfläche und damit in die Grundwasserleiter in Bewegung setzen (Leung et al., 2014).

Kohleflöze

Eine eher untergeordnete Rolle spielt die Speicherung von CO₂ in nicht gewinnbringenden Kohleflözen respektive die Nutzung des CO₂ zum enhanced coal bed methane recovery. Hier ist jedoch ein geringes Speichervolumen zu erwarten (Leung et al., 2014).

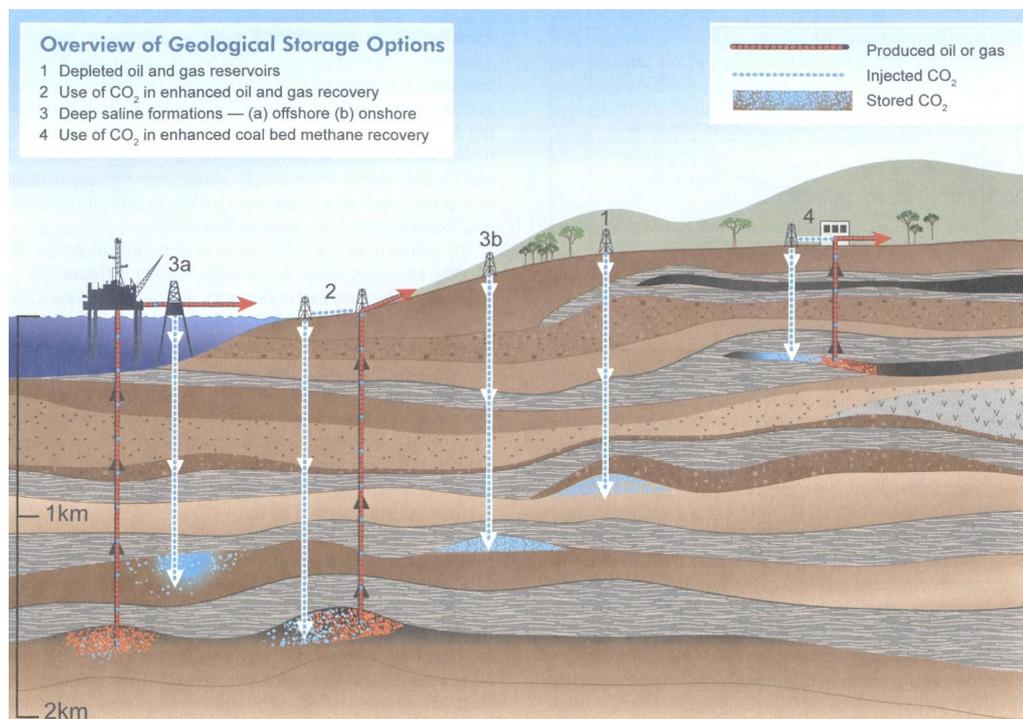


Abb. 1-2: Schemaskizze CCS: In Kraftwerken wird das CO₂ von anderen Gasen getrennt. Nach einer Verdichtung des Gases zur Minderung des Volumens wird es zu einer geologischen Speicherstätte transportiert und dort verpresst (IPCC, 2005)

Die globale Speicherkapazität im geologischen Untergrund wird auf eine Speichermenge von 10 Gt bis 200.000 Gt CO₂ geschätzt (Bradshaw et al., 2007). Saline Aquifere sind die zur Zeit am meisten untersuchten Speicherstätten: Sie sind weit verbreitet, weisen ein hohes Speicherpotential auf und eine Speicherung darin erscheint technisch machbar und erfolgversprechend. Für Deutschland wird eine Speicherkapazität in salinen Aquiferen von 6,3 bis zu 12,8 Gt CO₂ geschätzt (Knopf et al., 2010). Im Vergleich dazu betrug die CO₂-Emission in Deutschland im Jahr 2012 0,35 Gt CO₂ (Umweltbundesamt, 2014).

Im Rahmen des Geocapacity Projects wurde auf der Grundlage der anthropogenen CO₂ Emissionen in Deutschland und der zur Verfügung stehenden Speicher in salinen Aquiferen eine Nutzungsdauer von 30 Jahren für CCS prognostiziert (Vankilde-Pedersen et al., 2009). Neben einem hohen Speichervolumen, gekennzeichnet durch eine gute Porosität und Permeabilität des Speichergesteins, sind eine oder mehrere undurchlässige Deckschichten im Hangenden des Speicherhorizonts notwendig. Diese sollten möglichst eine Fallenstruktur aufweisen, in der sich das CO₂ akkumuliert, um das CO₂ am weiteren Aufsteigen und dem Entweichen aus dem Speicherkomplex zu hindern (Abb. 1-3). Dieser Speichermechanismus ist vor allem während und direkt nach der Injektion wichtig. Das migrierende überkritische CO₂ verdrängt das Formationswasser aus dem Porenraum, das in den Zwickeln der Poren verbleibende CO₂ wird direkt durch Kapillarkräfte in diesen Zwickeln gehalten und kann nicht weiter migrieren. Das CO₂ ist somit residual festgesetzt und kann nur noch mit hohem Druck die Kapillarkräfte überschreiten und aus den Porenzwickeln entfernen. Der nächste einsetzende Speicherprozess ist die Lösung des CO₂ im Formationswasser. Das gelöste CO₂ kann in Wechselwirkung mit dem Speichergestein treten und so mineralisch festgelegt werden (Abb.1-3). Diese Speichermechanismen wirken über lange Zeiträume, mit fortschreitender Speicherzeit wächst auch die Speichersicherheit.

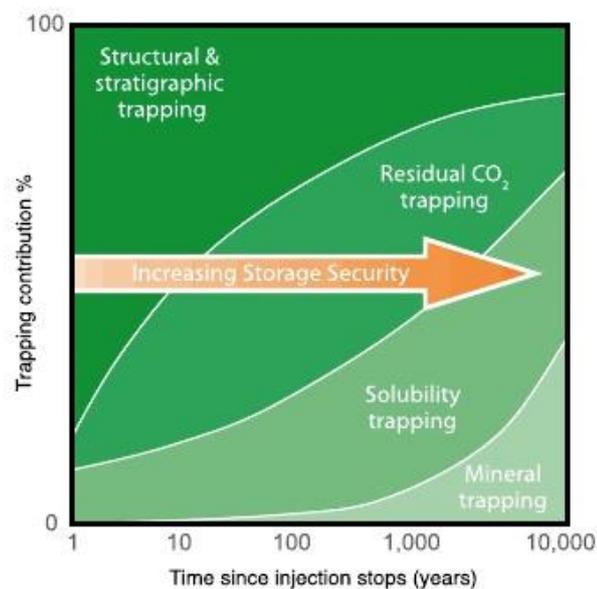


Abb. 1-3: Speichermechanismen im Reservoir. Mit zunehmender Zeit steigt die Sicherheit des Speichers (IPCC, 2005)

1.4 Energiespeicherung im geologischen Untergrund

Die Verstromung fossiler Energieträger, etwa in Kohlekraftwerken, kann durch Regelung dem Stromverbrauch angepasst werden. Bei der Nutzung erneuerbarer Energien muss die Energie zwischengespeichert werden, da Energieproduktion und Energieverbrauch nicht unbedingt zur selben Zeit stattfinden (Bauer et al., 2013). Zur Zeit werden Anlagen, etwa Windkraft- oder Solaranlagen, bei einer Überproduktion vom Stromnetz genommen. Vor dem Hintergrund, dass 60 % der Energie bis 2050 regenerativ produziert werden sollen, wird diskutiert, Energie in Form von Sekundärgasen (Druckluft, Wasserstoff oder Methan) in geologische Speicher zu verbringen. Als Speicher kommen die bereits beschriebenen Speicherformationen in Frage. Anders als bei CO₂ werden Luft, H₂, CH₄ gasförmig in den Untergrund verbracht, damit sind keine großen Tiefen wie bei der CO₂-Speicherung erforderlich. Deshalb kommen beispielsweise Gaskavernen und saline Aquifere in geringeren Teufen für eine Speicherung in Frage. Anders als bei langfristiger CO₂-Speicherung werden die Gase zur Energiespeicherung jedoch nur kurzfristig gespeichert. Aufgrund der fluktuierenden Speichermenge werden höhere Anforderungen an die mechanischen Gesteinseigenschaften des Speichers gestellt.

1.5 Leckagen

Anthropogene Eingriffe in den geologischen Untergrund unterliegen einer geringen gesellschaftlichen Akzeptanz. Denn selbst bei der Wahl eines optimalen Standortes besteht ein Restrisiko, dass injizierte Gase oder mineralisiertes Formationswasser, im folgenden Salzwasser genannt, aus den tieferen salinen Aquifere in Schutzgutformationen wie dem oberflächennahen genutzten Grundwasser, gelangen könnten (EU, 2009/31/EC; Borchardt et al., 2012). Wenn jedoch ausschließlich geologisch geeignete Standorte für eine solche Nutzung ausgewählt werden, kann das Restrisiko als eher gering eingeschätzt werden (Sauter et al., 2012; Sauter et al., 2013).

1.5.1 Gasleckagen

Vor allem die Durchlässigkeit der hydraulischen Barriere oberhalb des Speichers spielt eine wesentliche Rolle für die Sicherheit der hangenden Schutzgutformationen, wie etwa die oberflächennahen Grundwasserleiter, die zur Trinkwassergewinnung genutzt werden (IPCC, 2005). Kann ein gespeichertes Fluid, gasförmig oder überkritisch im Fall von CO₂, aus der Speicher-

formation entweichen, wird es dichtegetrieben aufwärts migrieren (Zhang et al., 2004). Mögliche Migrationspfade sind hierbei hydraulische Fenster in undurchlässigen Schichten, Wegsamkeiten entlang von geologischen Störungssystemen und Durchlässigkeiten entlang von Bohrlöchern wie fehlerhafte Casings (Lions et al., 2014; Bachu et al., 2009) (Abb. 1-4). Hier kommen die Injektions- und Monitoringbohrungen des Speicherbetriebes in Frage. Auch nicht mehr verwendete Altbohrungen, sei es zur Exploration oder zur Förderung von Erdgas oder Erdöl, dienen als potentielle Migrationspfade (Lemieux, 2011). Bei großen Öl- oder Gasfeldern, die schon seit mehreren Jahrzehnten befahren werden, könnte die schlechte Dokumentation alter Brunnen ein Sicherheitsproblem darstellen, da ihre Versiegelung den Anforderungen einer CO₂-Speicherstätte nicht entsprechen (Bachu et al., 2009). Weiterhin ist es denkbar, dass Gase aufgrund von Diffusionsprozessen durch die Deckschicht migrieren und so in oberflächennahe Schutzgutformationen gelangen.

Pruess (2008) hat simuliert, dass im Fall einer Leckage über einen Brunnen das überkritische CO₂ aufsteigt und seinen Aggregatzustand von der überkritischen Phase in die Gasphase wechselt, sobald Druck und Temperaturbedingungen unterhalb des kritischen Punktes von CO₂ erreicht werden. Dadurch nimmt das Volumen des CO₂ zu, zugleich erhöht sich seine Aufstiegs- geschwindigkeit. Weiterhin zeigen die Modellergebnisse, dass zusammen mit dem CO₂ auch salines Formationswasser in die Schutzgutformation transportiert werden kann.

Die Ausbreitung des Fluids im Hangenden des Speicherhorizontes hängt ab vom Migrations- pfad, der geologischen Struktur und der Heterogenität des Untergrundes. Der Fluidtransport findet entlang hydraulischer Wegsamkeiten statt. Steigt Gas auf und stößt auf eine hydraulische Barriere, wird es solange unterhalb dieser Barriere migrieren bis es diese überwindet und weiter aufsteigen kann. Damit kann es unter Umständen zu einer Auffächerung der Gasphase kommen. Im Fall einer Leckage von Methan aus einer Kaverne in Hutchinson, Kansas (Watney et al., 2003) migrierte das Gas zunächst rund 10 km unterhalb einer Tonschicht bis es in die Atmosphäre entwich. Dieser Vorfall zeigt, dass sich der Einfluss einer Leckage nicht auf die unmittelbare Umgebung der Speicherstätte beschränkt.

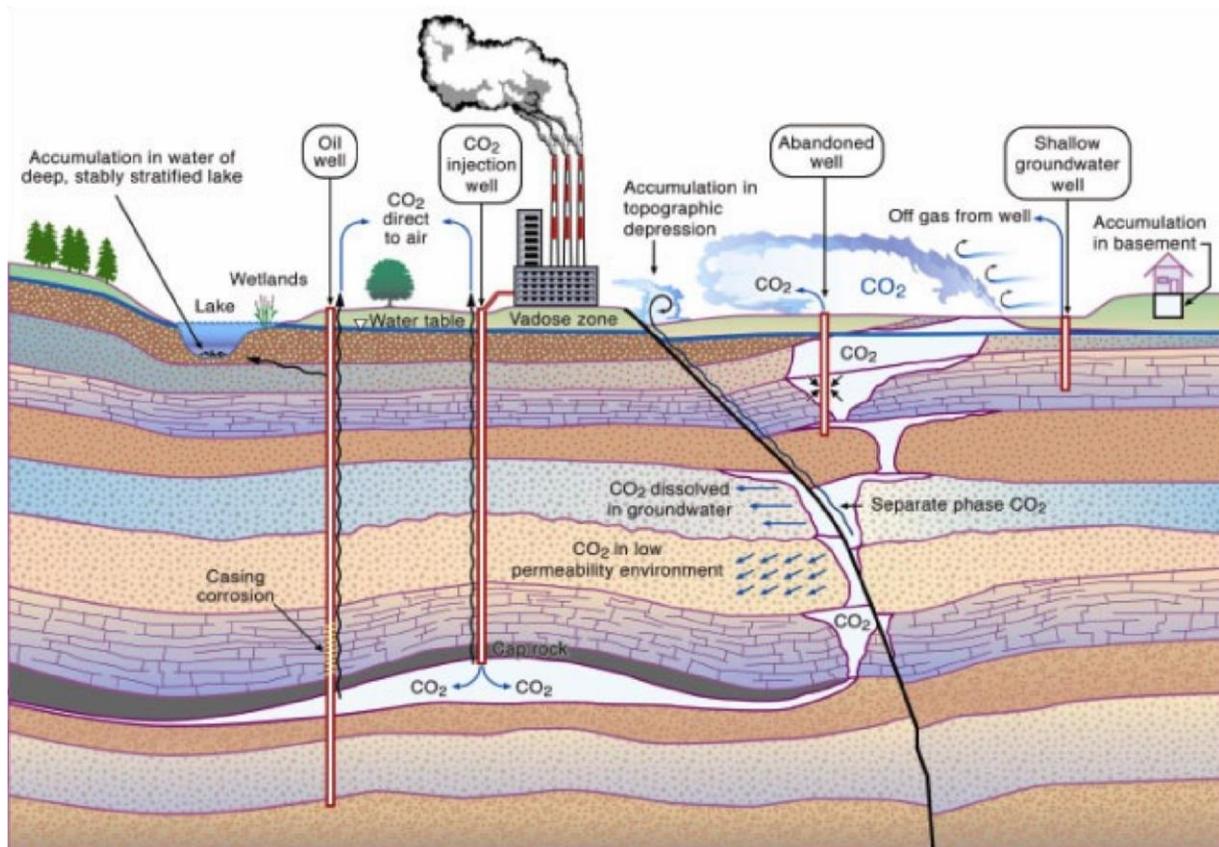


Abb. 1-4: Leckagepfade von CCS in oberflächennahe Schutzgutformationen (Zheng et al., 2009)

1.5.2 Salzwasserleckagen

Beim Fracking, aber auch bei der Injektion von Gasen, steigt der Reservoirdruck an und Formationswasser kann verdrängt werden (Pruess, 2008). Weder das Aquifersediment noch das Reservoirwasser sind signifikant kompressibel, daher kann sich der Druck schnell über große Distanzen ausbreiten (Benisch & Bauer, 2013; Zhou et al., 2008). Befindet sich im Bereich des sich erhöhenden Drucks eine permeable Wegsamkeit, wie etwa ein unzureichend abgedichteter Brunnen oder eine geologische Störung, kann salines Wasser in für die Trinkwassergewinnung genutzte oberflächennahe Grundwasserleiter gelangen (Oldenburg & Rinaldi, 2011; Zheng et al., 2009).

kann. Das entspräche unter Annahme einer radialen Ausbreitung einer Fläche von rund 2800 km², die gefährdet ist und einem Monitoring unterzogen werden sollte. Anders als bei den zuvor diskutierten Versalzungsprozessen ist hier weder bekannt, ob und wo es innerhalb der zu überwachenden Fläche zu einer Salzwasserleckage kommt und wie hoch die Konzentrationen des Salzwassers sein werden. Da Standorte mit bereits bekannten Wegsamkeiten, die eine Leckage ermöglichen könnten, von der Nutzung als Gasspeicher ausgeschlossen werden, sind die Wegsamkeiten für potentielle Leckagen unbekannt. Somit kann eine Leckage mit unbekannter Wahrscheinlichkeit innerhalb eines potentiell gefährdeten Gebietes auftreten und erfordert ein flächendeckendes Monitoring. Diese vereinfachte Abschätzung zeigt, wie groß gefährdete Gebiete sein können.

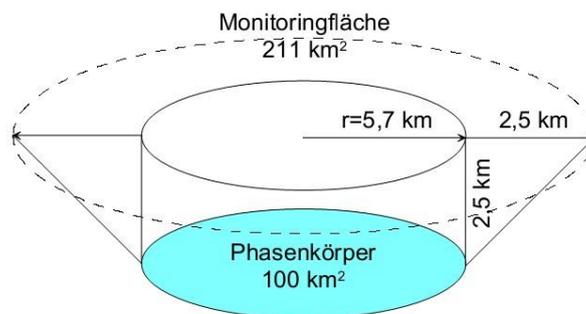


Abb. 1-6: Größenabschätzung der potentiell gefährdeten Fläche durch einen Störfall in CCS Betrieb (Schäfer, unveröffentlicht)

1.7 Potentielle geochemische Veränderungen des Grundwassers durch Leckagefluide

Gelangt gasförmiges CO₂ in das Schutzgut Grundwasser, löst es sich an der Grenzfläche zwischen Gasphase und Wasser und wird mit der Grundwasserströmung stromabwärts transportiert (Lions et al., 2014). Bis die CO₂-Leckage in den Aquifer versiegt, dient sie als Quelle für das im Wasser gelöste CO₂. Wieviel CO₂ sich im Grundwasser löst, hängt ab von der Leckagerate, mit der es in den Grundwasserleiter gelangt, von der Salinität des Grundwassers, den im Aquifer herrschenden Druck- und Temperaturbedingungen sowie der Kontaktfläche zwischen dem Gasphasenkörper und dem Grundwasser. Der Einfluss der Salinität ist für oberflächennahe Aquifere zu vernachlässigen, da sie im Allgemeinen gering ist. Der zunehmende Druck über die Tiefe führt zu einer Erhöhung der Löslichkeit. Die mit dem geothermischen Gradienten zunehmende Temperatur verringert die Löslichkeit, wobei der Einfluss des Drucks überwiegt (Duan, 2006). Die im norddeutschen Raum nutzbaren Aquifere sind bis zu Tiefen von 500 m

bei einer Temperatur von ca. 25 °C vorzufinden. Während die Löslichkeit in oberflächennahen Grundwasserleitern bei 1 bar und 10 °C 0,05 mol/kg_w (2,2 g/l) beträgt, nimmt die Löslichkeit in 500 m Tiefe bis auf 1,2 mol/kg_w (52,8 g/l) zu.

Bei der Lösung von CO₂ reagiert es mit Wasser zu Kohlensäure (H₂CO₃). Das H₂CO₃ dissoziiert und setzt Protonen frei, wodurch es zu einer Abnahme des pH-Wertes kommt; das saure Wasser kann mit der Mineralmatrix der Aquifersedimente reagieren. Minerallösungsreaktionen und Ionenaustauschprozessen können zu einer Pufferung des pH-Wertes führen. Carbonathaltige Sedimente puffern den pH-Wert auf pH 6 (Bauer et al., 2012). Andernfalls kann der pH-Wert weiter sinken. Ebenso können im Sediment enthaltene Spurenelemente und Schwermetalle freigesetzt werden, die wiederum die Qualität des Grundwassers mindern könnten (Bauer et al., 2012).

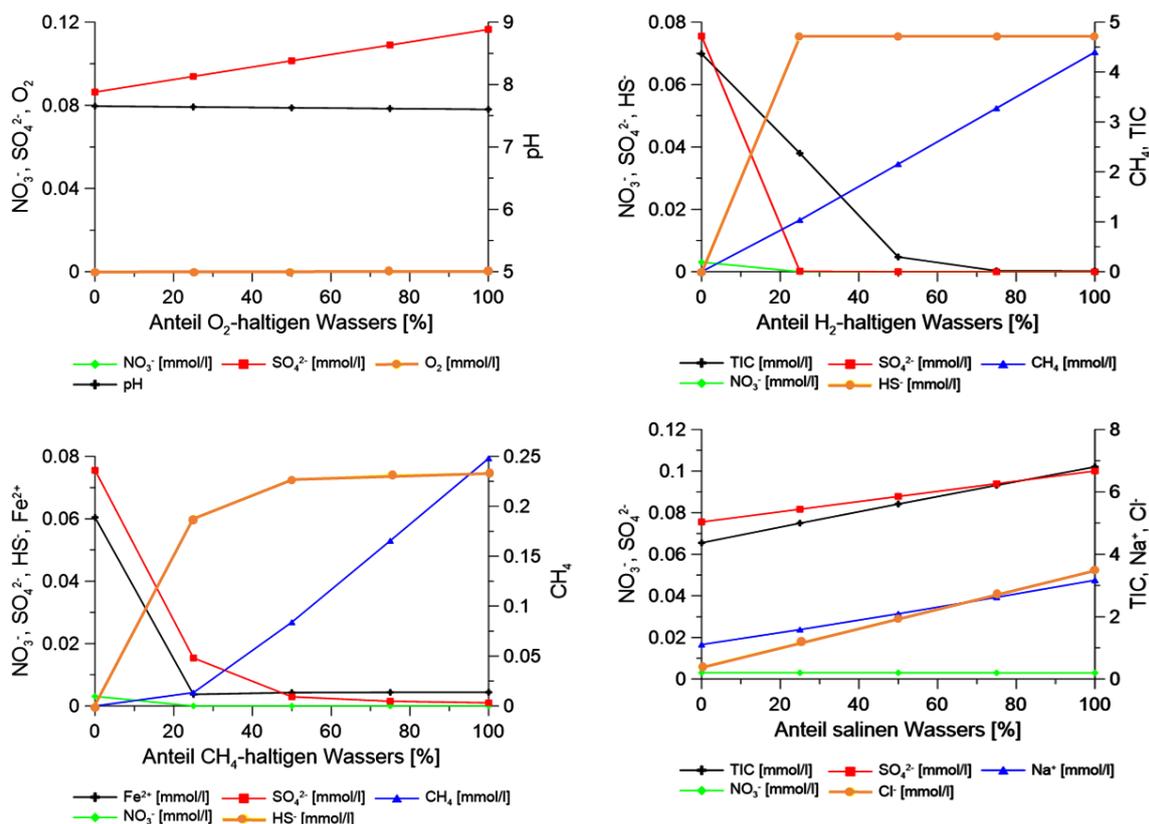


Abb. 1-7: Geochemische Wechselwirkungen durch die Intrusion von O₂, H₂, CH₄ und salzhaltigem Wasser in einen Grundwasserleiter (Schäfer, D; unveröffentlicht)

Geochemische Veränderungen durch Luft, Methan und Wasserstoff finden dann statt, wenn die Gase in einen anoxischen Grundwasserleiter gelangen. Durch den Luftsauerstoff kommt es zur

Oxidation aller reduzierten Wasserinhaltsstoffe. Methan und Wasserstoff können auch durch mikrobielle Reaktionen oxidierend wirken (Abb. 1-7).

Weiterhin kann es zur Versauerung des Wassers, zur Freisetzung von Schwermetallen und Erhöhung von Sulfat Konzentrationen durch die Verwitterung von Pyriten kommen. In Norddeutschland werden die tertiären Braunkohlesande welche Pyrite enthalten können zur Wasserversorgung genutzt. Aufgrund der geringen Pyritmengen ist zwar nicht von einem großflächigen Impakt auszugehen, aber die Versauerung kann zu lokalen Problemen führen.

Neben der Problematik der Versalzung von Süßwasser können zudem anorganische oder radioaktive Kontaminanten aus den tieferen Formationen in die Schutzgutformation gelangen (Wunsch et al., 2013). Weiterhin können Spurenstoffe durch Ionenaustausch freigesetzt werden.

1.8 Monitoring von Leckagen in oberflächennahen Schutzgutformationen

Zur Früherkennung von Leckagen in einem Schutzgut verlangen die Europäische Union, die US EPA sowie die Bundesrepublik Deutschland in entsprechenden Gesetzen und Gesetzesentwürfen eine Überwachung der Schutzgutformationen an CCS-Standorten. Das EU-Gesetz zur Nutzung des geologischen Untergrundes für CCS sieht dabei vor, dass eine Leckage innerhalb einer definierten Zeit detektiert werden muss, wobei ein entsprechend eingesetztes Monitoring in Bezug auf seine Kosten verhältnismäßig sein sollte (KSpG, 2012; EU, 2009/31/EC). Dabei fehlen zurzeit noch Angaben dazu, in welchem Zeitraum eine Detektion stattfinden muss. Definiert wird lediglich, dass Standortbetreiber den Behörden jährlich einen Bericht über den Stand des Monitorings vorzulegen haben.

Zur Entwicklung von Monitoringstrategien muss zunächst die Frage beantwortet werden, wie ein potentieller Impaktbereich an einem CCS-Standort aussieht: etwa hinsichtlich der räumlichen und zeitlichen Ausbreitung. Also ist zu klären, wie sich die Gase und das Salzwasser im Untergrund verhalten und ausbreiten. Die Ausbreitung von Gasen im Untergrund auf großen Skalen im Zusammenhang mit der Speicherung von Gasen wird erst seit der Erforschung von CCS intensiv betrachtet.

Inzwischen liegen Erfahrungen aus Pilotprojekten vor (Michael et al., 2010), was die Speicherung von CO₂ und das Monitoring des Reservoirs (Chalaturnyk & Gunter, 2004) betrifft. Dabei

steht die Ausbreitung von CO₂ in der tiefen Speicherformation, das Monitoring seiner Ausbreitung und dadurch verursachte geochemische Veränderungen im Vordergrund, so etwa an den Standorten Ketzin (Kiessling et al., 2010), Nagaoka (Sato et al., 2011) oder Sleipner (Audigane et al., 2007). Weiterhin wurden in Feldexperimenten CO₂-Leckagen simuliert zur Evaluierung von Monitoringmethoden (Lions et al., 2014; Peter et al., 2012). Am ZERT Testfeld stand die Detektion von CO₂, das in die ungesättigte Bodenzone und an der Geländeoberfläche entweicht, sowie ein Vergleich verschiedener Monitoringmethoden im Vordergrund. Einen Überblick bieten dazu Spangler et al. (2009). Am Standort Vrogum wurden zwei Experimente durchgeführt, bei denen die Ausbreitung von CO₂ in unterschiedlichen Aquifertiefen (5-10 m) untersucht wurde (Lee et al., 2016). Schwerpunkte der Studien waren die Ausbreitung des gasförmigen CO₂ und die geochemischen Folgereaktionen einer CO₂-Intrusion. Lassen et al. (2015) untersuchten an diesem Standort die Anwendbarkeit von Bodenradar zum Monitoring der Gasausbreitung. An einem Teststandort in Escatawpa, Mississippi, wurden die geochemischen Veränderungen durch einen Eintrag von gelöstem CO₂ untersucht, wobei die Freisetzung von Schwermetallen und Spurenstoffen eine besondere Fragestellung war (Trautz et al., 2012). Am Standort Maguelone (Frankreich) wurde die Ausbreitung von CO₂-Gas gemessen und modelliert (Basirat et al., 2013).

Der Bereich zwischen oberflächennahen Kompartimenten und der Speicherformation ist hingegen experimentell noch nicht untersucht. Ein Feldversuch auf Skala eines Leckagefalls aus einem Reservoir heraus kann allerdings aus technischen, ökonomischen und ökologischen Gründen bislang nicht durchgeführt werden. Als geeignetes Handwerkszeug zur Simulation einer geologischen Speicherung von CO₂ bietet sich der Einsatz von numerischen Modellen an. Einige Arbeiten befassen sich mit der CO₂-Speicherung, der Migration und dem Monitoring in der Speicherformation mithilfe numerischer Modelle (z.B.: Bauer et al., 2012). Die Migration des CO₂ vom Speicher bis in die Schutzgutformation ist in vereinfachten Simulationen modelliert worden (z.B. Pruess, 2008), wobei bisher keine horizontalen Heterogenitäten berücksichtigt wurden. Lamert et al. (2012) und Oldenburg et al. (2006) haben Modelle zur Evaluierung der Gasausbreitung in Feldexperimenten erstellt. Weiterhin gibt es einige Arbeiten, die sich numerisch mit den geochemischen Auswirkungen einer CO₂-Leckage befassen (Harvy et al., 2012): Esposito & Benson (2012) oder Manceau et al. (2014) haben sich allgemein mit dem Thema Monitoring und Sanierung befasst.

Salzwasserintrusionen werden bereits seit längerem in küstennahen Aquiferen und auf die Versalzung von Süßwasserleitern durch die Überförderung an Trinkwasserbrunnen untersucht (Appelo & Postma, 2007; Zhou et al., 2005). Dazu liegen auch Erfahrungen zum Monitoring von Salzwasserintrusionen vor. Flächendeckende geophysikalische Monitoringmethoden wie die elektromagnetische Vermessung des Untergrundes werden in Küstengebieten bereits in der Praxis angewendet. Diese Methode kann auch berührungsfrei durch eine Überfliegung des Untersuchungsgebiets mittels eines Hubschraubers vorgenommen werden (Burschil et al., 2012). Bevor solche Methoden auch bei lokalen Leckagen in einem großen zu überwachenden Gebiet effizient eingesetzt werden können, muss auch das Ausbreitungsverhalten von Salzwasserintrusionen evaluiert werden. Zwar sind generelle Ausbreitungsprozesse bekannt (Zhou et al., 2005), aber eine Evaluierung des Einflusses von hydraulischen Aquiferparametern ist wenig untersucht. Weiterhin ist die Größe des Salzwasserkörpers im Falle einer Intrusion wichtig, da durch die Veränderung der Salinität chemische Wechselwirkungen zwischen Wasser und Aquifermatrix stattfinden können, die zu einer nachteiligen Veränderung des Wassers führen können (Wunsch et al., 2013). Salzwassermigration im Zusammenhang mit CCS ist in nur wenigen Arbeiten mit Hilfe numerischer Simulationen untersucht worden (Birkholzer et al. 2011; Hou et al., 2014; Keating et al., 2012).

Bei küstennahen Salzwasserintrusionen oder beim Upconing ist bekannt, aus welcher Richtung Salzwasser in den Aquifer gelangen kann. Ein Monitoring kann in diesen Fällen ausgehend von der Salzwasserquelle stattfinden. Bei Standorten, an denen in den tieferen geologischen Untergrund eingegriffen wird, ist jedoch weder bekannt, ob eine Salzwassermigration in den Süßwasseraquifer stattfindet noch lässt sich prognostizieren, wo es zu einer Intrusion kommen kann.

1.9 Fragestellung dieser Arbeit

Zur Evaluierung geeigneter Monitoringmethoden und -konzepte muss abgeschätzt werden, wie sich Leckagefluide in Schutzgutformationen verteilen könnten. In der vorliegenden Arbeit soll der Einfluss von Parametern auf die Ausbreitung der Leckagefluide in oberflächennahe Grundwasserleiter mit numerischen Modellen untersucht werden. Dazu dienen systematische Sensitivitätsanalysen und Parameterstudien. Gegenstand der Untersuchung sind Permeabilität und Porosität im Aquifer, die Druck- und Temperaturbedingungen der beeinflussten Formation und

die Leckagerate. Dabei sollen die relevanten Aquiferparameter identifiziert werden, die bei Geländeerkundungen und der Parameterisierung für die Modelle von besonderer Bedeutung sind. Dadurch lassen sich die Ergebnisse von Standortsimulationen besser einordnen.

Zudem werden die Gase Kohlenstoffdioxid (CO₂), Wasserstoff (H₂), Methan (CH₄) und Luft mit Hilfe einer Sensitivitätsanalyse verglichen. Damit können die Unterschiede im Ausbreitungsverhalten der Gase identifiziert werden. So lässt sich abschätzen, inwieweit Modellergebnisse zum Migrationsverhalten von Gasen auf andere Gase übertragen werden können.

Anhand von einfachen dreidimensionalen Szenarien wird der Einfluss der Grundwasserströmung und der Morphologie des hangenden Stauers sowie die Kombination aus unterschiedlichen Neigungsrichtungen des Stauer und der Grundwasserströmungsrichtung zueinander untersucht. Aus den Ergebnissen wird das prinzipielle Ausbreitungsverhalten von Leckagefluiden abgeleitet. Daraus werden mögliche Konsequenzen für einen Impakt sichtbar.

In Szenarien mit realistischen großräumigen geologischen Strukturen typischer glazial geprägter Standorte wird der Einfluss unebener Morphologien des hangenden Grundwasserstauers mit und ohne Grundwasserströmung auf das Ausbreitungsverhalten von Gasen und Salzwasser untersucht.

Daraus folgend werden mithilfe der Szenarien Konsequenzen für ein Monitoring oberflächennaher Aquifere aufgrund des Ausbreitungsverhaltens an einem potentiellen Speicherstandort abgeleitet.

2. Theoretische Grundlagen

2.1 Mehrphasenströmung

Ein Mehrphasensystem in einem porösen Medium, z.B. in einem Sandaquifer, besteht aus mindestens zwei nicht miteinander vermischbaren Phasen, z.B. Wasser und gasförmigem CO₂. Dabei können die Komponenten der Phasen von einer Phase zur anderen übergehen, beispielsweise wenn sich CO₂ im Wasser löst (Helmig, 1997).

Die Strömung von Wasser in einem porösen Medium wird beschrieben durch das Darcy-Gesetz:

$$\mathbf{q} = -\mathbf{k}_f \mathbf{i} \quad (\text{Gl.1})$$

mit:

\mathbf{q}	Vektor für den Darcyfluss [m/s]
\mathbf{k}_f	Tensor für die hydraulische Durchlässigkeit [m/s]
\mathbf{i}	hydraulischer Gradient [-]

Dabei strömt Wasser mit dem Darcyfluss \mathbf{q} durch eine Sedimentmatrix mit der Durchlässigkeit \mathbf{k}_f von einem Ort eines höheren Druckpotentials zu einem Ort mit einem niedrigeren Druckpotential und folgt dabei dem Gradienten \mathbf{i} . Im Fall eines Einphasensystems ist der gesamte Porenraum mit Wasser gefüllt (Helmig, 1997).

Im Mehrphasensystem Wasser/CO₂ ist neben der Phase Wasser auch das gasförmige CO₂ im Porenraum. Die beiden Phasen beeinflussen sich dabei gegenseitig in ihrem Fließverhalten. Daher muss für die mathematische Beschreibung eines Mehrphasensystems das Darcy-Gesetz erweitert werden.

Im Darcy-Gesetz wird daher die hydraulische Durchlässigkeit \mathbf{k}_f durch die relative Permeabilität wie folgt ersetzt:

$$\mathbf{F}_\alpha = \rho_\alpha \mathbf{q} = -k \frac{k_{r\alpha} \rho_\alpha}{\mu_\alpha} (\nabla P_\alpha - \rho_\alpha \mathbf{g}) \quad (\text{Gl.2})$$

mit:

\mathbf{F}_α	Massenfluss der Phase α [kg/m ² s]
ρ_α	Dichte der Phase α [kg/m ³]
k	absolute Permeabilität [m ²]
$k_{r\alpha}$	relative Permeabilität für die Phase α [-]
μ_α	dynamische Viskosität für die Phase α [Pa s]
P_α	Fluiddruck der Phase α [Pa]
\mathbf{g}	Gravitationsbeschleunigung [m/s ²]

Die Permeabilität k ist ein reiner Materialparameter. Die relative Permeabilität $k_{r\alpha}$ beschreibt die anteilige Durchlässigkeit des Sediments für das Fluid α in Abhängigkeit der ebenfalls im Porenraum vorhandenen weiteren Phasen (Helmig, 1997; Pruess, 1999).

2.2 Der Kapillardruck

Befinden sich zwei nichtmischbare Phasen α und β , wie Wasser und Gas, in einem porösen Medium, so verringert sich der zur Verfügung stehende Porenraum der Phase α um die Sättigung S_β , also den Raum, den die Phase β einnimmt. Im Fall von Gas und Wasser ist das Wasser die sogenannte benetzende Phase und das Gas die sogenannte nicht benetzende Phase. Das Wasser liegt an der Wand der Pore an und umschließt somit die Gasphase.

Der Fluiddruck P_α der benetzenden Phase ist die Summe des Kapillardrucks P_c und des Fluiddrucks P_β der nicht benetzenden Phase.

$$P_\alpha = P_\beta + P_c \quad (\text{Gl.3})$$

Damit das Gas von einer Pore in die nächste strömen kann, muss der Kapillardruck P_c überwunden werden. Der Kapillardruck ist eine Funktion der Geometrie des Porenraumes und der Oberflächenspannungen der beiden Fluide (Helmig, 1997; Pruess, 1999).

Befinden sich die beiden Fluide in einem Porenraum, so stellt sich zwischen der an der Porenwand anliegenden Phase an der Phasengrenze und der zweiten Phase im Porenraum eine Dis-

kontinuität im Verlauf des Phasendrucks ein. Diese Differenz wird als Kapillardruck bezeichnet. Es entsteht ein Winkel zwischen der Grenzfläche der beiden Phasen und der Porenwand. Die Phase, deren Winkel zwischen Porenwand und Phasengrenzfläche kleiner ist, wird als benetzende Phase bezeichnet. Zieht sich die benetzende Phase aus der Pore zurück, wird der Winkel kleiner. Der Kapillardruck nimmt zu (Helmig, 1997; Pruess, 1999).

Aufgrund der Unregelmäßigkeit des Porenraums muss der Zusammenhang von Kapillardruck und Sättigung experimentell für zu betrachtende Mehrphasensysteme hergeleitet werden (Abb. 2-1) (van Genuchten, 1980).

Dabei ist die Van-Genuchten-Beziehung beschrieben durch:

$$P_c(S_w) = \frac{1}{\lambda} (S_e^{-\frac{1}{m}} - 1)^{\frac{1}{n}} \quad (\text{Gl.4.})$$

mit:

- $P_c > 0$ Kapillardruck [Pa]
- S_w Wassersättigung [-]
- S_e effektive Sättigung
- λ, n, m Van-Genuchten-Parameter

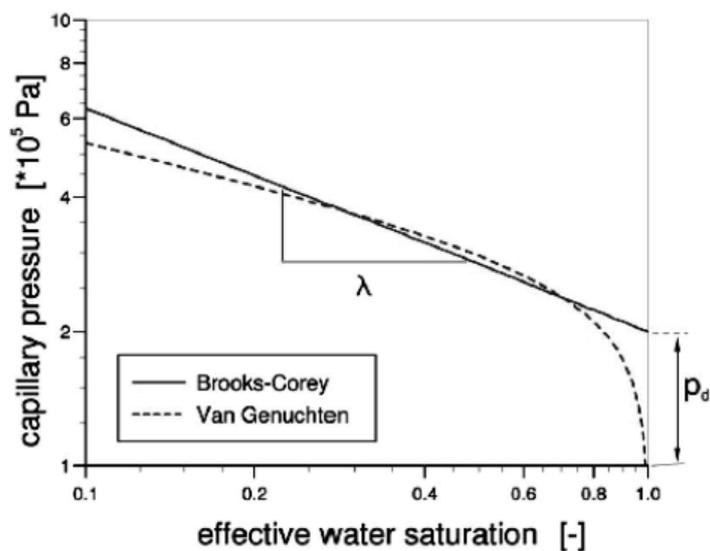


Abb. 2-1: Kapillardruck-Sättigungsbeziehung nach Brooks & Corey und Van Genuchten (Helmig, 1997)

2.3 Relative Permeabilität

Auch die relative Permeabilität ist in Abhängigkeit von der Phasensättigung im Porenraum zu betrachten (Abb. 2-2). Diese Beziehung wird durch die relative Permeabilität-Sättigungsbeziehung beschrieben.

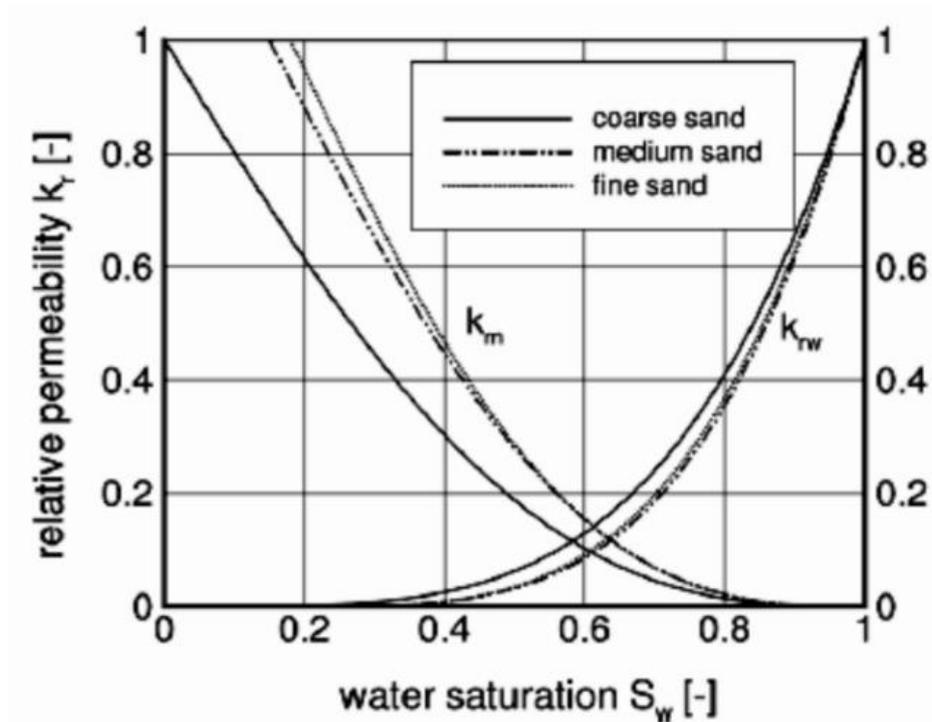


Abb. 2-2: Verlauf der relativen Permeabilität in Abhängigkeit der Wassersättigung für unterschiedliche Korngrößen (Helmig, 1997)

Hier wird die Van-Genuchten-Mualem Beziehung verwendet (Mualem, 1976; Helmig, 1997; Pruess, 1999).

$$k_{rw} = S_e^\epsilon \left[1 - \left(1 - S_e^{\frac{1}{m_{VG}}} \right)^{m_{VG}} \right]^2 \quad (Gl.5)$$

$$k_{rn} = (1 - S_e)^{\nu_{VGM}} \left(1 - S_e^{\frac{1}{m_{VG}}} \right)^{2m_{VG}} \quad (Gl.6)$$

mit:

S_e	effektive Sättigung
ε	Mualemparameter, der die Verbindungen der Poren beschreiben
m_{VG}	Van Genuchten Parameter
w	benetzende Phase
n	nicht benetzende Phase
Y_{VGM}	Mualemparameter, der die Verbindungen der Poren beschreiben
k_{rw}	relative Permeabilität der benetzenden Phase
k_{rn}	relative Permeabilität der nicht benetzenden Phase

2.4 Dichteströmung

Dringt Salzwasser durch eine Leckage in einen Süßwasseraquifer ein, breitet es sich aufgrund seiner höheren Dichte an der Basis des Aquifers aus und schichtet sich dort unter dem Süßwasser ein. Anders als bei der Mehrphasenströmung handelt es sich hierbei nicht um zwei differenziert zu betrachtende Phasen. Das Salzwasser und das Süßwasser sind voll vermischbar, unterscheiden sich aber aufgrund der unterschiedlichen Dichte und bilden so zwei Wasserkörper. Für die mathematische Beschreibung müssen daher Strömungs- und Transportgleichung um die Veränderung der Dichte, die nun nicht mehr wie im Fall von Süßwasser konstant ist, erweitert und aneinander gekoppelt werden. Die Kopplung geschieht über die Erweiterung des Darcy-Gesetzes für die Mehrphasenströmung (vergleiche Gl.1). Die Viskosität des Wassers ändert sich mit dem Salzgehalt. Die Konzentration des Salzes wiederum geht in die Transportgleichung ein:

$$\frac{\partial(nC)}{\partial t} + \nabla(nvC - n\rho\nabla C) - nqC = 0 \quad (\text{Gl.7})$$

mit:

C	Salzkonzentration
ρ	Dichte
\mathbf{q}	Darcyfluss
t	Zeit
n	Porosität
\mathbf{v}	Strömungsgeschwindigkeit von purem Wasser

Strömung und Transport sind über die Salzkonzentration miteinander gekoppelt und müssen entsprechend gekoppelt gerechnet werden (Pruess, 2005).

2.5 Verwendete Software

Die Simulationen der Gasausbreitung und Salzwasserausbreitung in oberflächennahen Grundwasserleitern wurden mit dem Programm TOUGH 2 gerechnet. Für das Prä- und Postprocessing wurde das GUI PetraSim 5.2. (Thunderhead Engineering, 2011) verwendet. Der TOUGH 2 Code dient der Berechnung von nicht-isothermalen Mehrphasenströmungsprozessen und dem Mehrphasentransport in porösen Medien und Gesteinsklüften (Pruess et al., 1999; Pruess et al., 2005).

Entsprechend der Fluide, die simuliert werden sollen, werden im Modellprogramm Bibliotheks-routinen verwendet, welche die jeweiligen Zustandsgleichungen, sogenannte equations of state (EOS), beinhalten. Die CO₂-Leckageszenarien werden mit dem EOS ECO2N berechnet, die Wasserstoffausbreitung mit dem EOS5, die Methanausbreitung mit dem EOS7C und die Luftmigration mit dem EOS3. Luft wird im EOS3 nicht als Gasgemisch betrachtet. Es wird vereinfachend ein homogenes Gas angenommen, dessen Fluideigenschaften Dichte, Kompressibilität, Enthalpie, Viskosität und Löslichkeit gemittelt werden. Daher handelt es sich bei dem Gas *Luft* im Modell um ein idealisiertes Gas, das im Folgenden als Luft* bezeichnet wird. Die in dieser Arbeit verwendeten EOS sind der Tab. 2-1 zu entnehmen. Eine genaue Beschreibung der Module ist im TOUGH2 Handbuch (Pruess et al., 1999; Pruess et al. 2005) zu finden.

Tab. 2-1: Verwendete TOUGH 2 EOS

Modul	Komponenten
ECO2N	Wasser, Salz(Wasser) und CO ₂
EOS3	Wasser und Luft
EOS4	Wasser und Wasserstoff
EOS7C	Wasser und Methan

Zur Simulation der Dichteströmung wird die Simulationssoftware TOUGH2 mit dem Modul ECO2N (Pruess, 2005) verwendet. Dieses Modul berechnet neben dem Mehrphasenfluss von gasförmigem CO₂ auch die Dichteströmung.

3. Methoden

3.1 Konzeptionelles Modell

Als Grundlage für die folgenden Szenariosimulationen wird aus den im CLEAN-Projekt (Schäfer et al., 2013) erhobenen Geländedaten und dem im Projekt erstellten Strukturmodell ein konzeptionelles Modell entwickelt. Der Standort wird in Kapitel 3.6 beschrieben.

Bei dem betrachteten Aquifersystem handelt es sich um einen oberflächennahen Süßwasseraquifer, dessen Sedimentmatrix aus homogenem Sand besteht. Im Hangenden und Liegenden des Aquifers befinden sich für Wasser und Gas undurchlässige Grundwasserstauer. Zu den Seiten hin ist der Grundwasserleiter für Fluide offen. In der vorliegenden Arbeit werden als potentielle Leckagefluide die Gase Kohlenstoffdioxid (CO₂), Wasserstoff (H₂), Methan (CH₄), Luft* sowie Salzwasser betrachtet.

Die Leckagefluide dringen von unten in den Aquifer ein. Als Leckagequelle wird eine Punktquelle angenommen, etwa ein undichter Brunnen. Von dort aus breiten sich die Leckagefluide entsprechend ihrer Fluideigenschaften aus. Gas steigt bis an den hangenden Stauer auf, wo es am weiteren Aufstieg gehindert wird und sich lateral in Abhängigkeit von der Morphologie ausbreitet. Salzwasser schichtet sich dabei an der Aquiferbasis ein und breitet sich dort aus. Vorhandene Grundwasserströmung oder eine Morphologie der Grundwasserstauer wirken auf die Migration der Fluide ein.

Um dieses System in einem Modell darzustellen, wird für die systematischen Untersuchungen folgendes Basismodell aufgestellt:

Der Aquifer dieses Basismodells ist planar und seine Oberkante liegt 10 m unter der Geländeoberkante, was einem absoluten Druck (hydrostatischer und atmosphärischer Druck) von 199425 Pa entspricht. Wegen der impermeablen Schichten im Hangenden und im Liegenden dieses Aquifers werden die entsprechenden Modellränder als undurchlässig angenommen. Zu den Seiten hin ist das Modell für Fluide offen, daher wurden feste Druckrandbedingungen gewählt.

Für das Aquifersediment wurde eine horizontale Permeabilität (K) von $4,2 \times 10^{-11} \text{ m}^2$ ($k_f = 3,1 \times 10^{-4} \text{ m/s}$) und eine vertikale Permeabilität von $4,2 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ ($k_f = 3,1 \times 10^{-5} \text{ m/s}$) verwendet. Für die

effektive Porosität wurde ein Wert von $n_e = 0,2$ aus Literaturdaten vergleichbarer quartärer Sedimente angenommen (Hölting & Coldewey, 2013). Die Grundwassertemperatur beträgt konstant 11 °C.

Die Fluidleckage befindet sich an der Basis des Aquifers und ist über die Simulationszeit konstant. Der Leckagepfad vom Reservoir bis in den oberflächennahen Aquifer wird in der vorliegenden Arbeit nicht betrachtet.

Im Fall der Gasleckagen dringen die betrachteten Gase über einen Leckagepfad durch den liegenden Stauer in den Aquifer ein und breiten sich von dort ausgehend dichtegetrieben bis zum hangenden Grundwasserstauer aus. Dort migrieren sie abhängig von der Morphologie der Aquiferoberkante und bilden einen Gasphasenkörper aus. Abhängig von der Löslichkeit der betrachteten Gase löst sich ein Anteil des Fluides im Grundwasser. Die Parameter der Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen und die relative Permeabilität sind aus der Literatur entnommen (Tab. 3-1).

Tab. 3-1: Parameter für Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen und die relative Permeabilität nach van Genuchten (van Genuchten, 1980 und Esposito und Benson, 2012) und geologische Parameter des Sediments (z.B. Schäfer et al. 2012)

van Genuchten Parameter	Van Genuchten Parameter m	0.457
	Residuale Wassersättigung s_{lr}	0
	Van Genuchten Parameter α	$5.11 \cdot 10^{-4}$
	Maximaler Druck P_{max}	$1 \cdot 10^7$
	Residuale Wassersättigung s_{lr}	0.15
	Maximale Wassersättigung s_{ls}	1
	Residuale Gassättigung s_{gr}	0.1
	Van Genuchten Parameter n	1.84
Geologische Parameter	Effektive Porosität n_e [%]	20.0
	horizontale Permeabilität K_z [m^2]	$4.2 \cdot 10^{-12}$
	vertikale Permeabilität K_x, K_y [m^2]	$4.2 \cdot 10^{-11}$
	Gesteinsdichte ρ [kg/m^3]	2600

In den Szenarien zur Salzwasserleckage dringt das Salzwasser ebenfalls über die Basis in den Aquifer ein. Es bildet sich kein separater Fluidkörper. Salz und Süßwasser sind vollkommen mischbar. Lediglich die Konzentration der Wasserinhaltsstoffe Natrium und Chlorid sind gegenüber dem Süßwasser erhöht. Dies führt zu einer höheren Dichte; das in den Grundwasserleiter eingedrungene Salzwasser schichtet sich an der Basis des Aquifers ein. Die Salzkonzentration kann sich dabei durch Vermischung mit dem Süßwasser verdünnen.

Ausgehend von diesem Basismodell werden – angepasst an die unterschiedlichen Fragestellungen – unterschiedliche Modellgeometrien verwendet und Parameter entsprechend der Fragestellung verändert oder variiert. Die Abweichungen zu dem Basismodell werden in den folgenden Kapiteln beschrieben.

3.2 Sensitivitäten von Aquiferparametern auf die Ausbreitung von Leckagefluiden

Zunächst wird exemplarisch für das Gas CO₂ und Salzwasser eine natürliche Spannbreite der oben genannten Parameter realisiert, die anhand der Geländeuntersuchung am Forschungsstandort CLEAN ermittelt wurden (vgl. Kap. 3.6). Die am Forschungsstandort CLEAN erhobenen mittleren Parameter wurden als Basisparameter definiert. Dieser Datensatz dient als Referenzdatensatz für die Untersuchungen.

Zur Bewertung der Sensitivität der oben genannten Parameter in Bezug auf den Zielparameter *Radius* des sich ausbreitenden Fluides wurde danach eine lokale Sensitivitätsanalyse durchgeführt (Siebertz et al., 2010). Hierzu wurde eine Veränderung der Basismodellparameter Permeabilität, Porosität, Aquiferdruck und Temperatur sowie der Leckagerate um $\pm 25\%$ vorgenommen. Zur Auswertung wurde die Steigung (m_{25}) der Ergebniskurve zur Erstellung des Sensitivitätsindex berechnet. Der Sensitivitätsindex m_{25} gibt damit die prozentuale Änderung des Radius bei einer Veränderung der Parameter um 25 % wieder.

Zielparameter ist der Radius des Fluidkörpers, der in der obersten Zellschicht gemessen wurde. Der Radius ist hier definiert als die Strecke vom Mittelpunkt des Modells bis zu der letzten Zelle, in der eine Gassättigung oder Salzkonzentration größer als Null festzustellen ist.

3.2.1 Gasleckagen

Die Sensitivität der Parameter Permeabilität (K), effektive Porosität (n_e), Druck (P) und Temperatur (T) des Aquifers sowie Leckagerate (LR) auf das Ausbreitungsverhalten von Gasen wird in einen radialsymmetrischen Modellaufbau ermittelt (Abb. 3-1). Als Grundlage dient das aufgestellte Basismodell.

Das Modell ist ein Zylinder mit einem Radius von 500 m. Die räumliche Diskretisierung wurde in $1\text{ m} \times 1\text{ m}$ Zellen vorgenommen. In horizontaler Richtung bis zu einem Radius von 5 m und über die oberen 2 m des Aquifers wurden das Modell in 0.4 m Zellen diskretisiert. Es wird hier

eine feinere Diskretisierung verwendet, weil davon ausgegangen wird, dass die Gase sich dort ausbreiten. Das Modell ist insgesamt in 6565 Zellen diskretisiert.

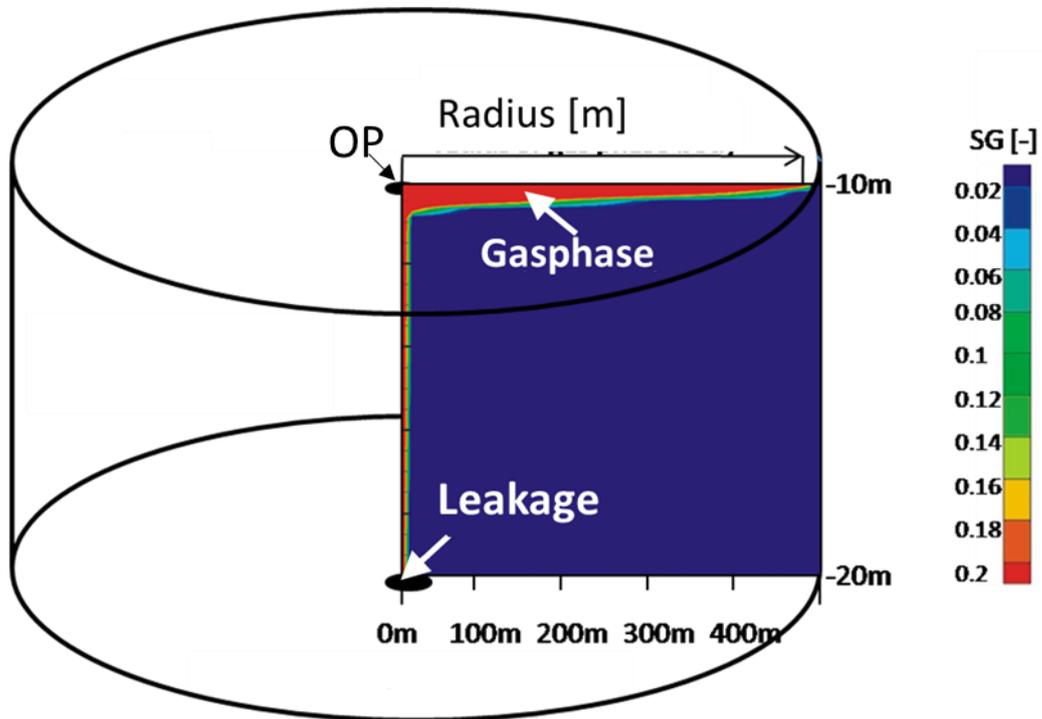


Abb. 3-1: Schematische Darstellung der Modellgeometrie. Das Radialsymmetrische Modell hat einen Radius von 500 m und eine Mächtigkeit von 10 m. An der Außenseite des Zylinders befindet sich eine feste Druckrandbedingung. An der Modellbasis im Zentrum des Modells befindet sich die Gasleckage (Wiegiers et al., 2012)

Im Basismodell wird für CO₂ die Leckagerate $1,16 \times 10^{-4}$ kg/s gewählt. Die Raten für Luft*, H₂ und CH₄ sind so gewählt, dass die durch die Leckage eintretenden Gase unter Normalbedingungen dasselbe Volumen haben.

Die Simulations- und Leckagezeit beträgt ein Jahr. Zu Beginn der Simulationen befindet sich nur Wasser im Modellgebiet.

3.2.2 Salzwasserleckagen

Das Modell entspricht dem in 3.2.1 beschriebenen radialsymmetrischen Modell. Da zu erwarten ist, dass sich das Salzwasser aufgrund seiner höheren Dichte an der Modellbasis unterhalb des Süßwassers einschichtet, wurde in den unteren 2 m des Modells die Diskretisierung in $0,5 \text{ m} \times 0,5 \text{ m}$ Zellen verfeinert.

Die Leckagerate des Salzwassers beträgt $2,24 \times 10^{-3}$ kg/s und die Salzkonzentration 36,1 g/l. Die NaCl-Konzentration des initial im Aquifer vorhandenen Süßwassers beträgt 0 g/l, was natürlich nicht realen Grundwasserleitern entspricht. Es wurde hier aber verwendet, um den direkt durch die Salzwasserintrusion verursachten Konzentrationsunterschied darzustellen.

3.3 Einfluss der räumlichen Diskretisierung auf Simulationsergebnisse

Um den Einfluss der Diskretisierung auf die Verteilung eines Gasphasenkörpers zu untersuchen wird ein weiteres radialsymmetrisches Modell verwendet. Die Aquiferparameter entsprechen denen des Basismodells.

Der Radius dieses Modells wird auf 250 m verkürzt, die Modellmächtigkeit beträgt 5 m. Die Modellzellen haben in X-, Y-, und Z-Richtung die gleiche Kantenlänge. Aufgestellt werden vier Szenarien mit den Diskretisierungen 5 m, 2,5 m, 1 m und 0,1 m. Zellen, in denen keine Veränderung stattfindet, werden inaktiv gesetzt, um die Rechenzeit weiter zu verkürzen. Die Simulationszeit beträgt 50 Tage. Das Leckagefluid ist gasförmiges CO₂ und die Leckagerate beträgt 1×10^{-5} kg/s.

3.4 Einfluss von Grundwasserströmung und Aquiferneigung auf Leckagefluide

3.4.1 Einfluss auf die Ausbreitung von gasförmigen CO₂

Ausgehend von dem radialsymmetrischen Basismodell wird ein einfaches 3D-Modell verwendet, um den Einfluss der Grundwasserströmungsgeschwindigkeit und der Aquiferneigung auf die Ausbreitung eines Gasphasenkörpers zu untersuchen. Die Untersuchung wurde zum Teil im Rahmen einer Bachelorarbeit durchgeführt (Büttner, 2012).

Als Modellgebiet dient eine Fläche mit 100 m × 100 m Kantenlänge. Die Mächtigkeit des Aquifers beträgt 2 m. Der Aufstiegskanal des Gases wird verkürzt, da für die Ausbreitung des Gases der Bereich direkt unterhalb des Grundwasserstauers interessiert.

Horizontal wird das Modell in 1,5 m × 1,5 m diskretisiert. Im Inneren des Modells, 15 m um die Leckage herum, werden 1 m × 1 m Zellen gewählt. Vertikal hat das Modell 3 Schichten. Die Mächtigkeit der untersten Schicht beträgt 1 m, die der darüberliegenden 0,5 m (Abb. 3-2).

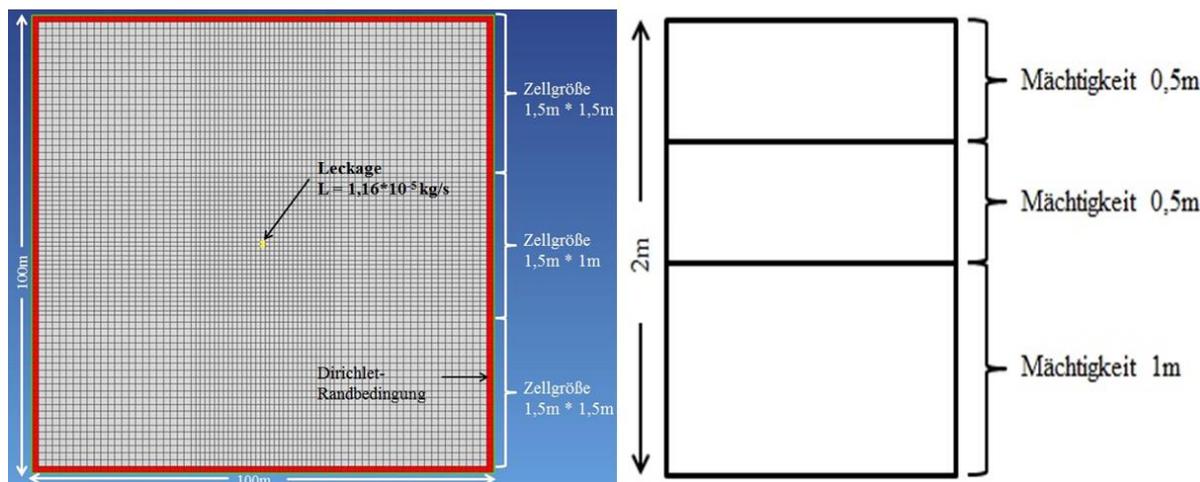


Abb. 3-2: Modelldiskretisierung horizontal (links) und vertikal (rechts) (nach Büttner, 2012)

Die Ober- und Unterkante des Modells sind undurchlässige Ränder. An den Seiten des Modells wird für die Randbedingung der hydrostatische Druck konstant gehalten. Der an der Modelloberkante einem Absolutdruck von 199425 Pa beträgt (vgl. S. 41). Die Aquiferparameter sind die im radialsymmetrischen Modell verwendeten Parameter. Die Leckagerate ist in allen Simulationen konstant mit $1,16 \times 10^{-5} \text{ kg/s}$.

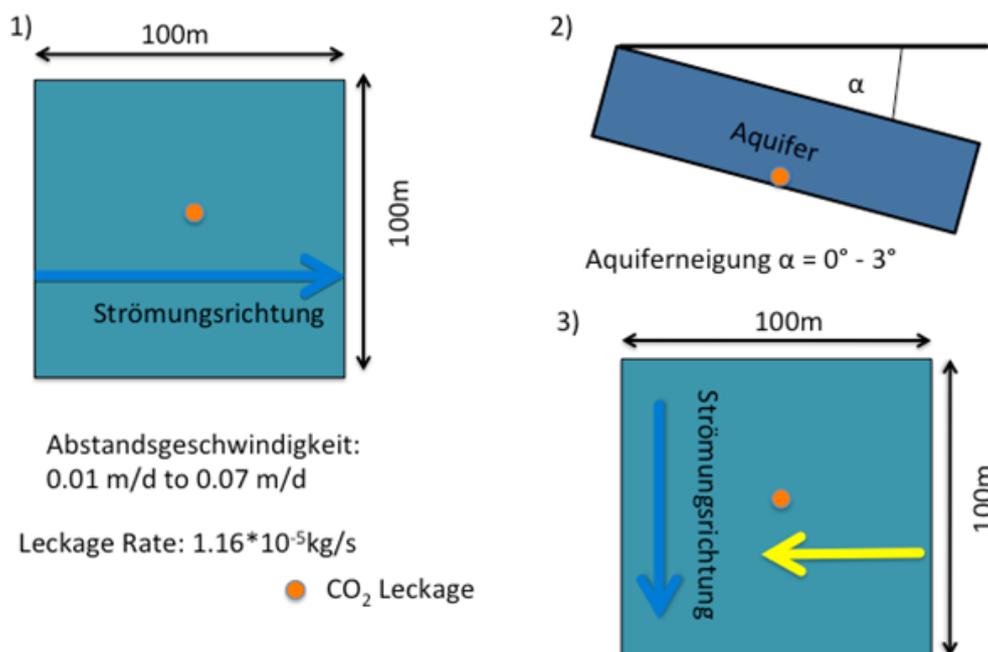


Abb. 3-3: Schematische Darstellung des konzeptionellen Modells. 1) Aufsicht auf das Modellgebiet mit Leckage und Strömungsrichtung. 2) Querprofil des Modellgebiets mit der Leckage und dem Neigungswinkel α . 3) Draufsicht auf das Modellgebiet mit Leckage, Strömungsrichtung und Aquiferneigung

Zur Untersuchung des Einflusses der Strömungsgeschwindigkeiten auf die Ausbreitung des gasförmigen CO₂ werden als Abstandsgeschwindigkeiten jeweils 0,01 m/Tag, 0,05 m/ Tag und 0,07 m/ Tag gewählt. Die Strömung wird dabei von links nach rechts angenommen (Abb. 3-3).

In einer zweiten Serie von Simulationen ohne Grundwasserströmung wird die Neigung des Aquifers variiert. Die verwendeten Neigungswinkel sind 0,5°, 1°, und 2°.

In einer dritten Simulationsreihe werden Aquiferneigung und Grundwasserströmung miteinander kombiniert. Der Neigungswinkel ist 2° und die Grundwasserströmungsgeschwindigkeit 0,1 m/Tag. Die Fallrichtung (Dip) des Grundwasserstauers ist dabei mit, gegen und 90° zur Grundwasserströmung gerichtet.

Zur Auswertung der Szenarien wird die Fläche betrachtet, die der Gasphasenkörper und die Fahne des gelösten Gases unterhalb des Grundwasserstauers einnehmen (Abb. 3-4).

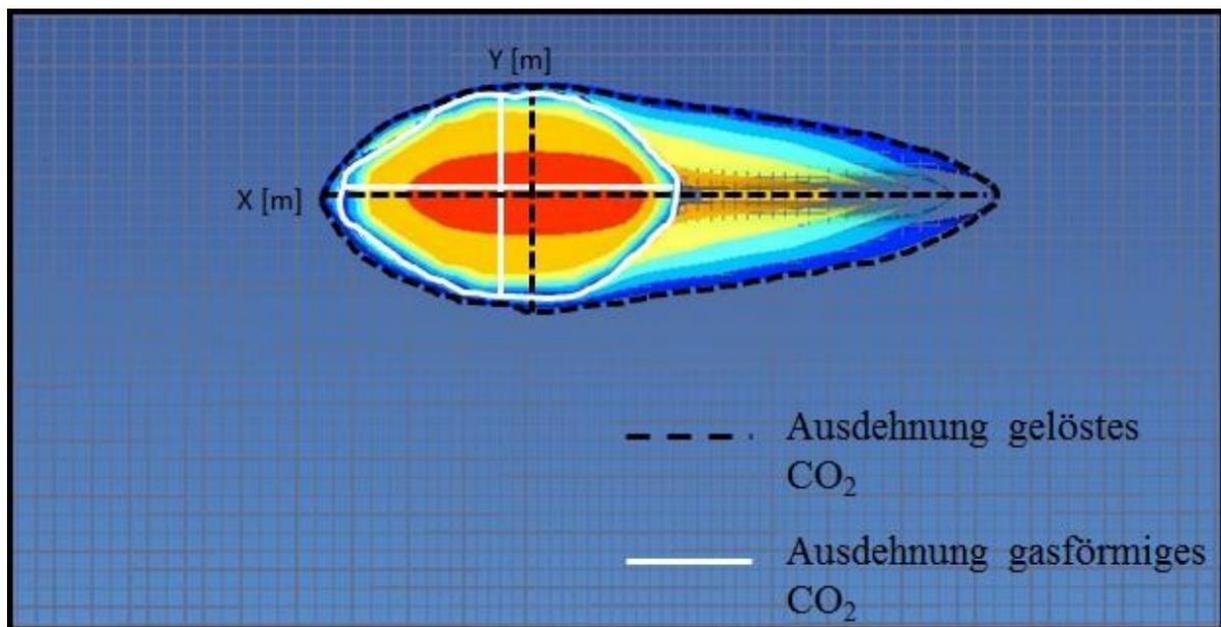


Abb. 3-4: Definition des Einflussbereichs in einem Grundwasserleiter durch eine Leckage (nach Büttner, 2012)

3.4.2 Einfluss auf die Ausbreitung von gasförmigem und gelöstem CO₂

Um den Einfluss höherer Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten auf die Ausbreitung von gasförmigem und gelöstem CO₂ zu untersuchen, werden Strömungsgeschwindigkeiten zwischen 0,1 m/Tag und 0,5 m/Tag verwendet. Dazu wird ein dreidimensionales Modell mit einer größeren Erstreckung in Strömungsrichtung aufgebaut. Der Aquifer erstreckt sich in X-, Y- und Z-Richtung jeweils 300 m, 50 m und 4 m. Die Zellen sind in X- und Y-Richtung 2 m lang und

in Z-Richtung 0,5 m. Als Randbedingungen wurde im An- und Abstrom der hydrostatische Druck konstant gehalten. Alle anderen Ränder sind undurchlässig. Das Druckpotential ist jeweils so gewählt, dass das Grundwasser von links nach rechts strömt. Die gewählten Abstandsgeschwindigkeiten des Grundwassers betragen 0,0 m/ Tag, 0,1 m/ Tag, 0,3 m/ Tag und 0,5 m/ Tag und decken somit die Fließgeschwindigkeiten des Strömungsmodells „CLEAN-Standort“ ab (Schäfer et al. 2013). Der CO₂-Gasphasenkörper breitet sich quer zur Strömungsrichtung symmetrisch um die Leckagequelle aus. Das Modellgebiet wird entlang seiner Spiegelebene und parallel zur Grundwasserströmungsrichtung halbiert. Die Leckagerate beträgt $1,16 \times 10^{-5}$ kg/s bei einer Simulationszeit von einem Jahr.

3.5 Einfluss auf die Ausbreitung von Salzwasser

Auch zur Quantifizierung des Einflusses der Grundwasserströmung und der Dichteströmung auf die Ausbreitung des salinen Wassers wird das zuvor beschriebene einfache 3D-Modell verwendet und entsprechend der Fragestellung angepasst. Dieses Modell hat ebenfalls eine horizontale Erstreckung von 100 m × 100 m bei einer Mächtigkeit von 5 m, da die Modellränder ansonsten den Salzwasserkörper beeinflussen würden. Die horizontale Diskretisierung entspricht der des Basismodells. Vertikal werden die untersten 1,4 m des Aquifers mit 0,28 m mächtigen Zellen diskretisiert, die restlichen 3,6 m mit 1,8 m mächtigen Zellen. Die Abstandsgeschwindigkeit der Grundwasserströmung wird im Modell mit 0 m/Tag, 0,01 m/Tag, 0,09 m/Tag, 0,1 m/Tag und 0,5 m/Tag variiert.

Um den Einfluss der Morphologie der Aquiferbasis zu untersuchen, wird der Aquifer um 0,5°, 1°, 3°, 5°, 10° und 20° geneigt. Die maximale Neigung, die im CLEAN Standortmodell ermittelt wurde, beträgt 3°. Mit Hilfe der höheren Neigungen sollte ermittelt werden, ab wann sich ein deutlicher Einfluss der Neigung auf das Fließverhalten des Salzwassers zeigt.

In einem weiteren einfachen 3D-Modell wird die Aquiferneigung von 1° mit einer Grundwasserströmung von 0,1 m/Tag kombiniert. Dabei wird die Grundwasserströmung entgegen, mit und senkrecht zur Aquiferneigung implementiert. In einer weiteren Simulationsreihe wird die Aquiferneigung von 1° mit NaCl-Konzentrationen von 0,9 g/l bis 9 g/l kombiniert, um den Einfluss der Dichte des salinen Wassers zu untersuchen. In allen Simulationen wird eine Leckagerate von $4,2 \times 10^{-3}$ kg/s zugrunde gelegt.

Die Auswertung der einfachen 3D Szenarien erfolgt über das Messen der Flächen. Zielparameter ist in diesen Szenarien die Fläche, die der Salzwasserkörper an der Aquiferbasis einnimmt.

3.6 Forschungsstandort CLEAN

3.6.1 Standortbeschreibung

Im Rahmen des Forschungsprojekts CLEAN (Kühn et al., 2012) wird für einen geplanten Enhanced Gas Recovery Pilotstandort ein Teilgebiet des Standortes im oberflächennahen Bereich genauer untersucht, um den potentiellen Einfluss einer möglichen Veränderung durch eine Leckage aus einer geologischen Speicherung von CO₂ zu untersuchen und Monitoring Parameter auf der Basis der dortigen Standorterkundung zu evaluieren und numerische Leckageszenarien zu simulieren.

Aus bereits vorhandenen und neu gewonnenen Bohrdaten wurde von der Firma GICON ein geologisches Strukturmodell erstellt, das als Grundlage für numerische Simulationen dient (Kühn et al., 2012).

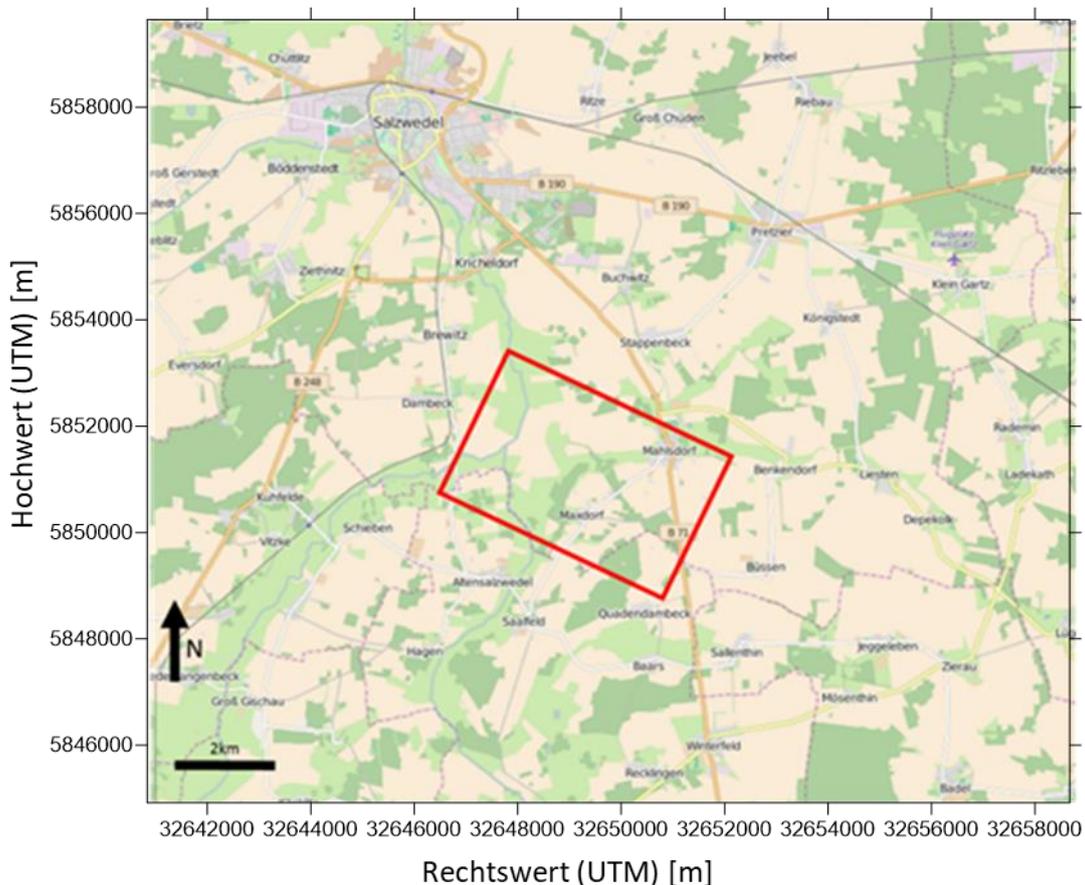


Abb. 3-5: Umgebungskarte mit der Lage des Untersuchungsgebiets (roter Kasten) (Schäfer et al., 2013)

Der Standort wird im folgenden kurz beschrieben, seine detaillierte Beschreibung ist Schäfer et al. (2013) zu entnehmen.

Der Standort liegt in der Altmark südlich der Stadt Salzwedel im Umland der Ortschaften Mahlsdorf und Maxdorf. Das Untersuchungsgebiet umfasst eine Fläche von 14,5 km² (Abb. 3- 5). Die Nordost-Südwest-Erstreckung beträgt maximal 3265 m, die in Nordwest-Südost-Richtung 4402 m. Die höchste topographische Erhebung am Standort ist 40 mNN und die größte Tiefe beträgt -20 mNN.

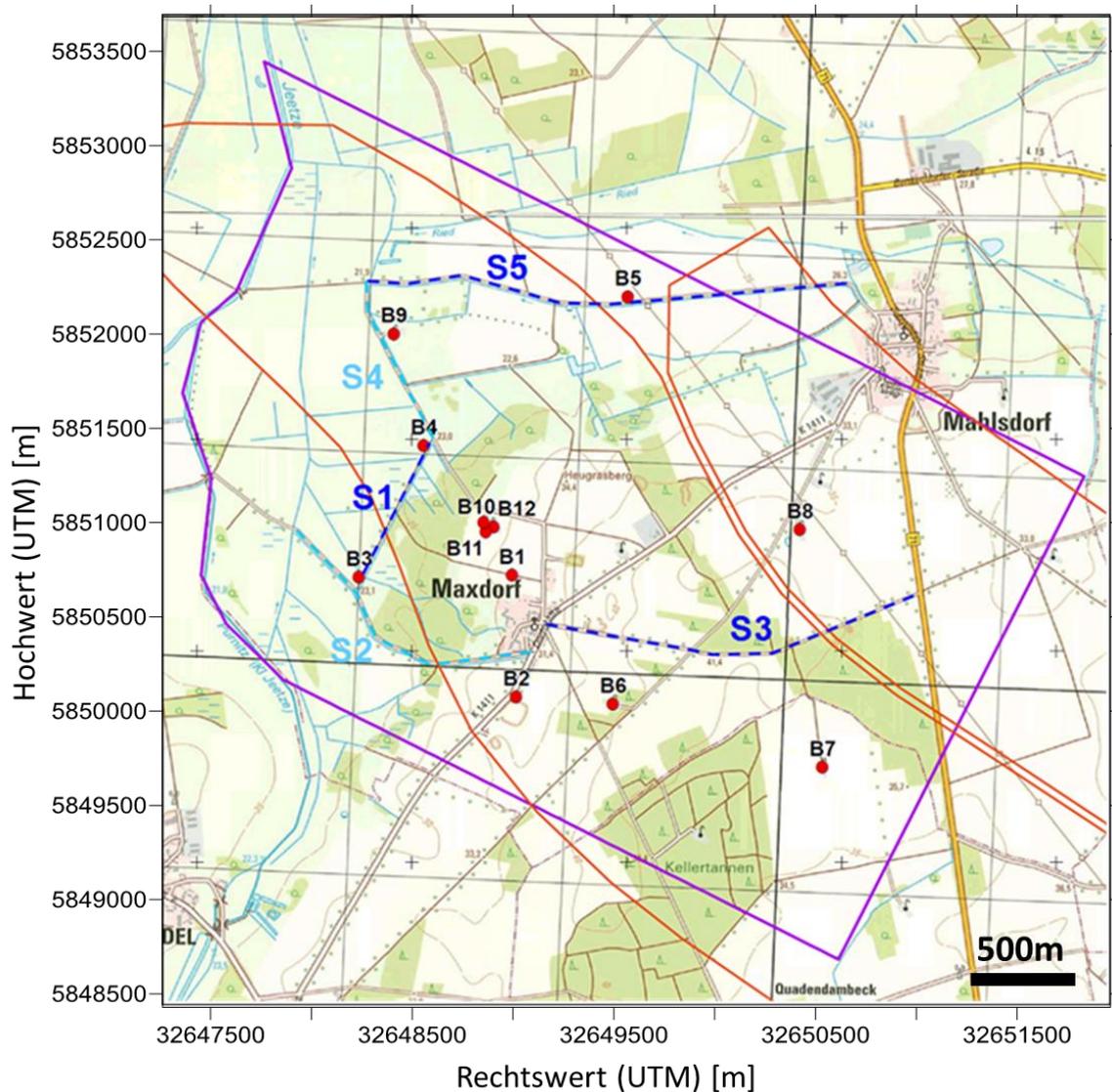


Abb. 3-6: Modellgebiet (violett umrahmt) mit Grundwassermessstellen (B1-B12), (nach Schäfer et al. 2013)

Die westliche Grenze des Gebiets ist der Vorfluter Jeeze, in den vermutlich die betrachteten Grundwasserleiter entwässern. Die östliche Grenze des Gebiets wird, senkrecht zur vermuteten Grundwasserströmung, östlich des Ortes Mahlsdorf gesetzt (Abb. 3-6).

Das Relief des Untersuchungsgebiets ist im Westen durch die Flussniederungen der Jeetze-Dumme geprägt und im Osten durch ein Geschiebemergel-Plateau. Geologisch ist das Untersuchungsgebiet glazio-fluviatil entstanden. Es liegt zwischen dem Saaleglazial im Süden und dem Weichselglazial im Norden.

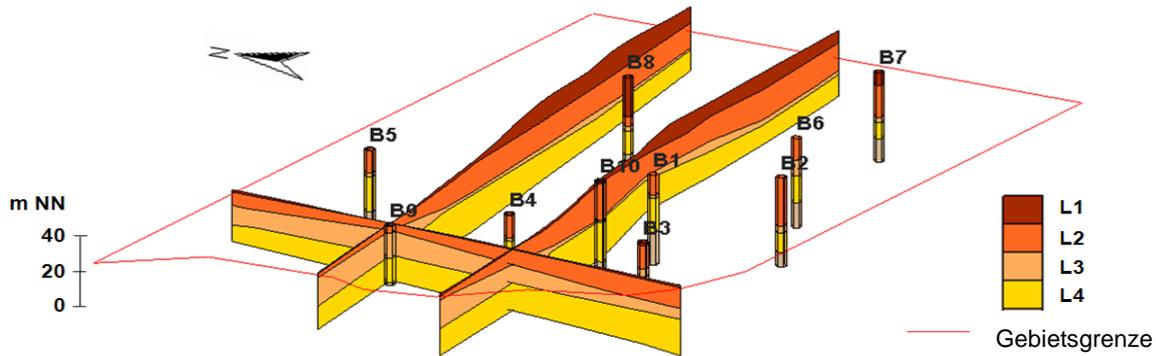


Abb. 3-7: Bohrprofile, Profilschnitte und Gebietsgrenze des CLEAN-Untersuchungsgebiets mit den Schichten L1, L2, L3 und L4 (nach Schäfer et al., 2013)

Die quartären oberflächennahen Sedimente lassen sich in vier hydrogeologische Einheiten unterteilen (Abb. 3-7). Der unterste Aquifer (L4) wurde gebildet von fluviatilen Sedimenten der letzten Periode des Elster Glaziales und der ersten Periode des Saaleglaziales. Im Hangenden befinden sich Geschiebeablagerungen der ersten Saaleperiode (L3), die die Aquifere im Hangenden und Liegenden hydraulisch voneinander trennen. Der obere Grundwasserleiter (L2), gebildet im Weichsel- und Saaleglazial, wird von saaleeiszeitlichen Geschiebemergeln sowie holozänen Tonen überlagert, die eine Mächtigkeit zwischen 10 m und 20 m erreichen (L1). Sedimentanalysen am Standort ergaben für die Grundwasserstauer k_f -Werte zwischen $3,4 \times 10^{-7} \text{ m/s}$ und $1,4 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ und für die Grundwasserleiter zwischen $5,4 \times 10^{-5} \text{ m/s}$ und $6,5 \times 10^{-4} \text{ m/s}$ (Schäfer et al., 2013).

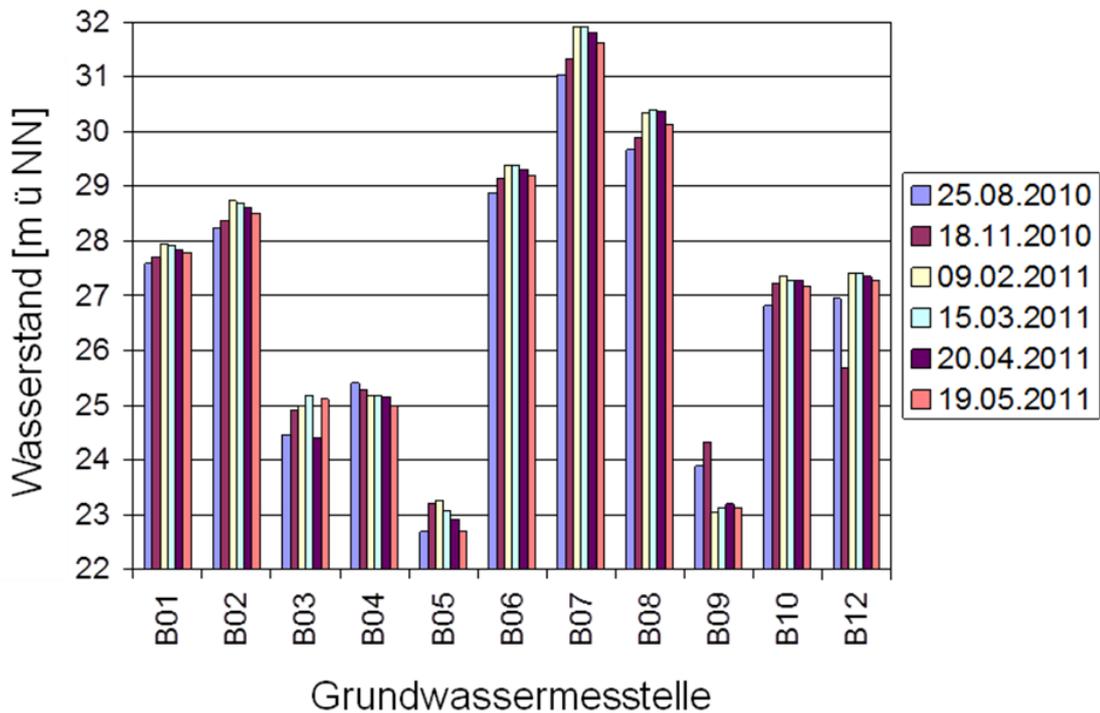


Abb. 3-8: Wasserstände in den Grundwassermessstellen an sechs Stichtagsmessungen (Schäfer et al., 2013)

Eine mineralogische Zusammensetzung der Aquifersedimente wird auf der Grundlage der ermittelten Elementzusammensetzung berechnet. Daraus ergeben sich neben dem Hauptbestandteil Quarz Inhalte von 5 % Orthoklas, 2,5 % Albit, 2,5 % Anorthite, 1,5 % Eisenhydroxide und 0,4 % Kalzit.

In den am Standort installierten Grundwassermessstellen B1-B12 wurden während der Projektlaufzeit an sechs Stichtagsmessungen die Wasserstände gemessen (Abb. 3- 8). Der Vergleich aller Stichtagsmessungen zeigt im Verlauf der Zeit nur geringe Schwankungen der Wasserstände. Für die Kalibrierung des hier dargestellten Strömungsmodells wird die Stichtagsmessung vom 29.08.2010 verwendet.

Die hydrochemische Untersuchung (Abb. 3-9) der Grundwasserproben zeigt eine heterogene Grundwasserzusammensetzung – verteilt über die Messpunkte; über den Untersuchungszeitraum von einem Jahr bleiben die Konzentrationen der Wasserinhaltsstoffe jedoch relativ konstant (Schäfer et al., 2013).

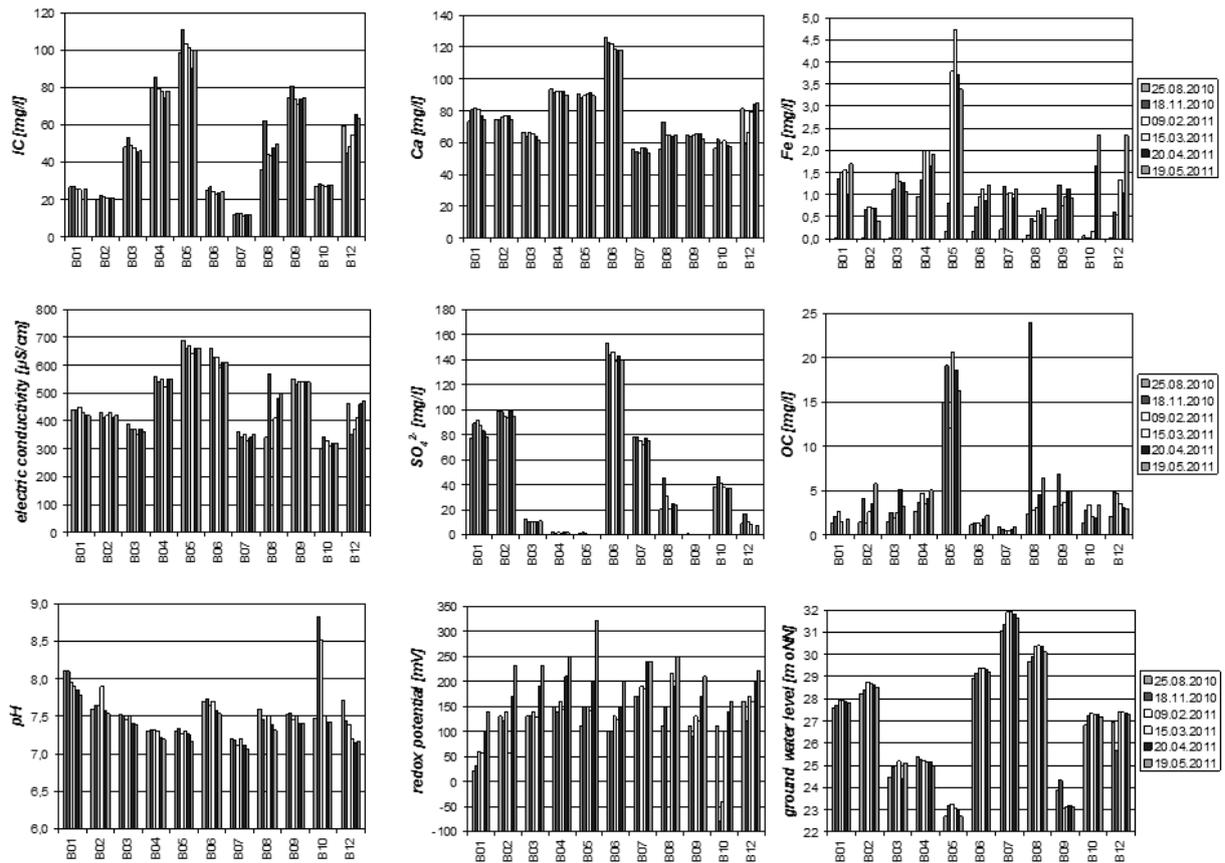


Abb. 3-9: Grundwasserzusammensetzung an den sechs Stichtagen am Forschungsstandort CLEAN (Schäfer et al., 2013)

3.6.2 Strömungsmodell

Die Erstellung des Grundwasserströmungsmodells für den CLEAN-Standort beruht auf dem zuvor beschriebenen Strukturmodell, das die Geometrie und Verteilung der geologischen Einheiten enthält (Abb. 3-10). Die vier hydrogeologischen Einheiten werden im Modell als vier Schichten implementiert. Die vier Einheiten sind: L1 (Aquitard), L2 (Aquifer), L3 (Aquitard) und L4 (Aquifer). Die Oberkante von L1 entspricht der Geländeoberkante. Als Sediment wird für die Aquifere ein Sand (Anfangsbedingung: $K_f \sim 1 \times 10^{-4}$ m/s) und für die Aquitarde ein Geschiebemergel (Anfangsbedingung: $K_f \sim 1 \times 10^{-7}$ m/s) verwendet. Unterkante der Schicht L4 ist die Basis des Modells.

Die verwendete Modellsoftware ist Modflow 2005 V. 1.8.00 (US Geological Survey). Zur Parameteranpassung wird das in die grafische Benutzeroberfläche Visual Modflow 2009 implementierte Modul PEST verwendet. Die Bahnlinien werden mit ModPath V. 4.00 R2 berechnet.

Der Wasserstand beträgt in der nördlichen Randbedingung 24,1 m und im Süden 24,3 m. Die Ränder werden als Dirichlet-Randbedingung, konstante Piezometerhöhe, definiert.

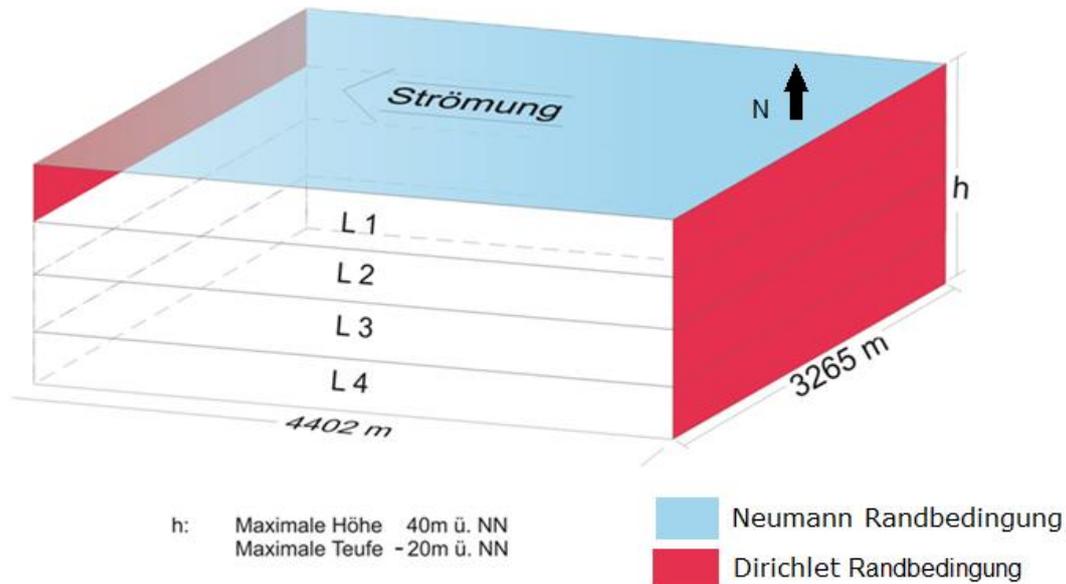


Abb. 3-10: Konzeptionelle Skizze des Strömungsmodells. mit den Schichten L1 bis L4. Die rot markierten Flächen kennzeichnen Dirichlet-Randbedingungen: feste Piezometerhöhe. Die blaue Fläche markiert eine Neumann-Randbedingung zur Darstellung der Grundwasserneubildung

Es wird angenommen, dass die Grundwasserleiter in den Vorfluter entwässern. Unterhalb des Vorfluters in den Schichten L2 bis L4 strömt kein Wasser in das oder aus dem Gebiet hinaus. Es wird eine Neumann-Randbedingung angenommen, dass heißt über diesen Rand findet keine Strömung statt. Der Modellrand im Südosten des Gebietes wird über die gesamte Mächtigkeit als Dirichlet-Randbedingung definiert, für die ein fester Wasserstand von 31 mNN aus den gemessenen Wasserständen extrapoliert wird. Über die Oberfläche des Modellgebietes kommt es zu einer Grundwasserneubildung. Für das Strömungsmodell wird eine Grundwasserneubildungsrate von 50 mm/a abgeschätzt, was einem Drittel des durchschnittlichen Niederschlages entspricht. Alle anderen Randbedingungen sind undurchlässige Ränder (Neumann-Randbedingung). Der nordöstliche und der südwestliche Rand sind so gewählt, dass sie parallel zu den vermuteten Bahnlinien der Wasserpartikel verlaufen. Der Grundwasserspiegel ist gespannt. Als Anfangsbedingung wird der Wasserstand im gesamten Modellgebiet auf 32 mNN gewählt.

Das Untersuchungsgebiet wird vertikal in vier Modellschichten diskretisiert, wobei die Mächtigkeit einer geologischen Schicht einer Zelle entspricht. Damit korrespondieren die Zellmächtigkeiten mit den Schichtmächtigkeiten und sind entsprechend dem Relief der einzelnen Schichten variabel. Horizontal wird das Modellgebiet in X-Richtung in 100 Zellen und Y-Richtung in 50 Zellen diskretisiert. Das Strömungsmodell ist stationär.

3.6.3 Ausbreitung von Leckagefluiden am CLEAN-Standort

Für das Modell zur Ausbreitung der Leckagefluide wird das Modellprogramm TOUGH2 (Pruess, 1999) verwendet. Die Geologie wird auf die Schicht L4 vereinfacht, die Morphologie der Schichtober- und -unterkante wird aus dem geologischen Strukturmodell übernommen. Die Aquiferparameter entsprechen denen des Basismodells (Tab. 3-1).

Das 14,5 km² große Modellgebiet wird mit Zellen von 44 m Größe in X-, 67 m in Y-, und zwischen 2 m und 5 m in Z-Richtung diskretisiert. Wie bereits für das Grundwasserströmungsmodell diskutiert, werden auch hier feste Randbedingungen an den nordwestlichen und dem südöstlichen Rändern gesetzt. Der Druck wurde jeweils so gewählt, dass sich eine mittlere Grundwasserströmungsgeschwindigkeit von 0,6 m/Tag einstellt (Schäfer et al., 2013).

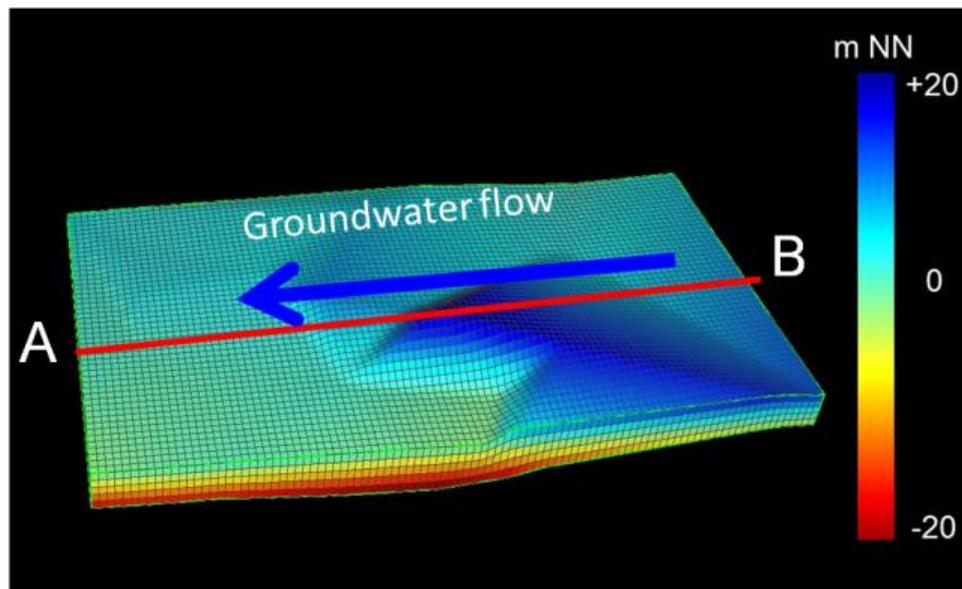


Abb. 3-11: Morphologie der Aquiferoberkante der Schicht L4, des CLEAN-Standortmodells, mit der Grundwasserströmungsrichtung und der Lage des Profilschnittes A-B (Wiegiers et al., 2012)

Das Relief der Oberkante des betrachteten Grundwasserleiters ist in Abb. 3-11 dargestellt. Die höchste Erhebung des Grundwasserleiters befindet sich mit 19 mNN im südlichen Teil des

Modellgebietes. Nach Norden, Osten und Westen hin liegt die Oberkante des Aquifers niedriger und die Topographie ist flacher.

3.6.4 Einfluss der Morphologie des hangenden Stauers auf die Gasausbreitung

Die Grundwasserströmung wird in diesem Szenario vernachlässigt, um nachzuvollziehen, wie sich gasförmiges CO₂ unter dem Einfluss des Reliefs der Aquiferoberkante im Modellgebiet verteilt. Es sind vier Szenarien mit unterschiedlichen Positionen der Leckagen mit einer Leckagerate von jeweils $1,16 \times 10^{-2}$ kg/s simuliert (Abb. 3-12). Die Positionen der Leckagequellen sind so gewählt, dass die Leckagen in Bereichen mit unterschiedlich ausgeprägtem Relief der Aquiferoberkante liegen (Abb. 3-12). Das Relief hat im Umfeld der Leckagen folgende Gradienten: A $1,5 \times 10^{-3}$, B und C maximal 3×10^{-3} und D 2×10^{-2} . Die Leckagen befinden sich an der Modellbasis. Zur Quantifizierung der Größen der CO₂-Gasphasenkörper werden die Umriss der Flächen unterhalb der Aquiferoberkante gemessen, die vom gasförmigen CO₂ eingenommen werden. Als Gasphase wird gewertet, wenn die Gassättigung >0 % ist.

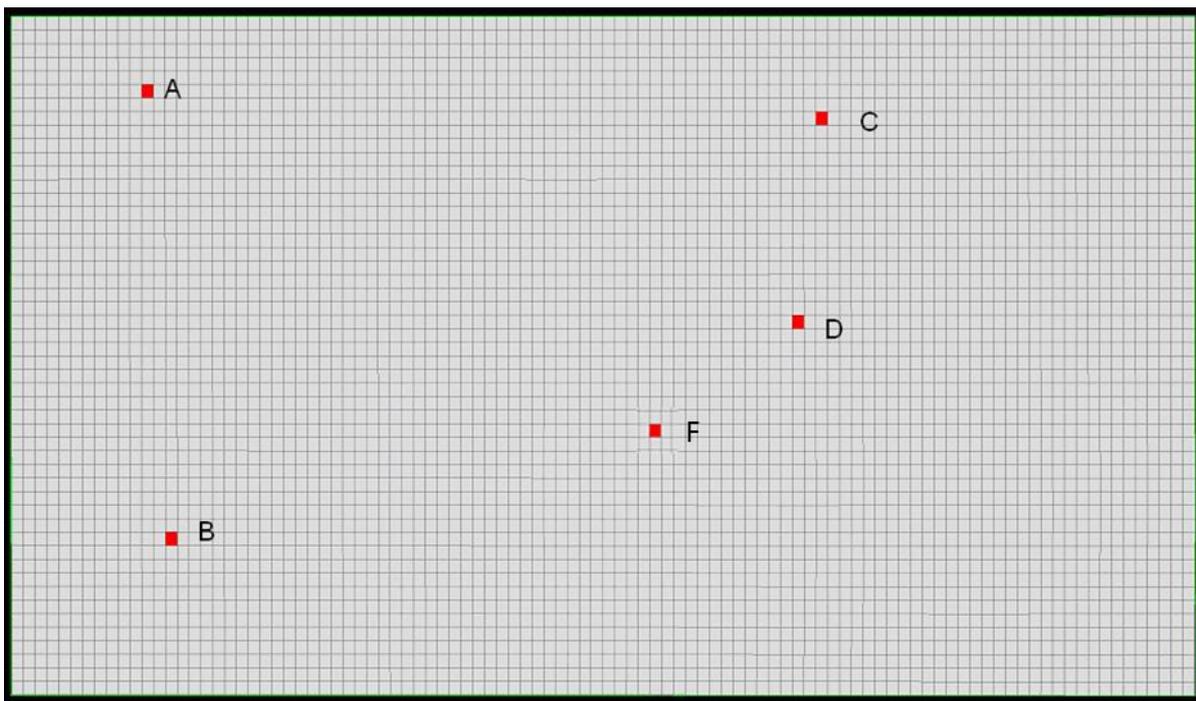


Abb. 3-12: Positionen der CO₂ Gasleckagen A, B, C, D und F (nach Wiegers et al., 2012)

In Szenario F beträgt die Grundwasserströmung 0,6 m/Tag. Als Position der Leckage wird der östliche Rand der Antiklinalstruktur auf dem Profilschnitt A-B gewählt (Abb. 3-13). Die Leckagerate beträgt $1,16 \times 10^{-2}$ kg/s bei einer Simulationszeit von einem Jahr.

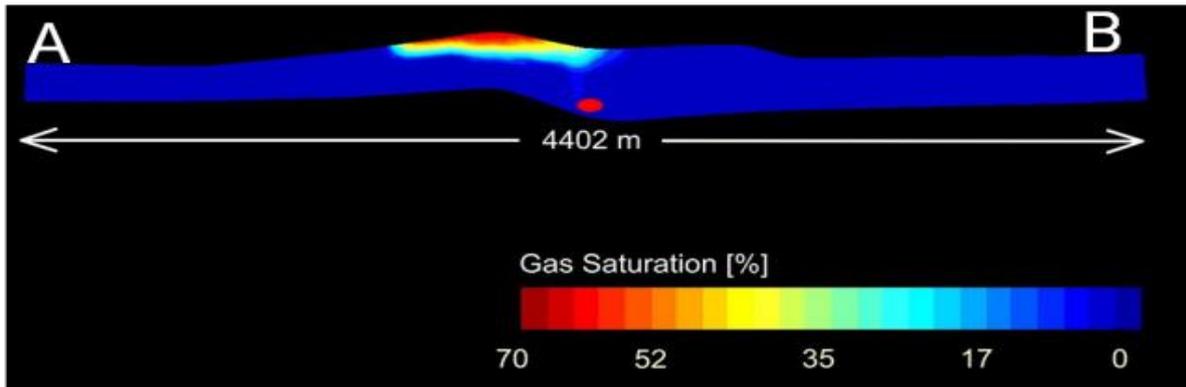


Abb. 3-13: Vorläufiges Ergebnis mit der Position der CO₂ Gasleckage F und der Antiklinalstruktur im Längsprofil parallel zur Grundwasserströmung durch das CLEAN Modellgebiet (Wieggers et al., 2012)

3.6.5 Einfluss der Morphologie des liegenden Grundwasserstauers und der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung von Salzwasser

Das Modell entspricht dem für die Gasmigration verwendeten Modell des virtuellen CLEAN-Standortes. Für die Leckage wird konzentriertes Salzwasser untersucht: hoch salines Wasser aus der Buntsandsteinformation mit einer NaCl-Konzentration von 283,34 g/l und oberflächennahes Wasser aus den unteren Braunkohlesanden mit einer NaCl-Konzentration von 7,61 g/l. Die Leckagerate wird bei beiden Simulationen mit $4,2 \times 10^{-3}$ kg/s gewählt und bleibt über die Simulationszeit von 10 Jahren konstant. Die angenommene Position der Leckage sowie die Positionen der für die Auswertung gewählten Beobachtungspiegel OB1 und OB2 sind Abb. 3-14 zu entnehmen.



Abb. 3-14: Position der Salzwasserleckage an der Aquiferbasis im CLEAN Modellgebiet, sowie die Position der Beobachtungsmessstellen OB1-3 (Wieggers & Schäfer, 2015)

In Anlehnung an die Trinkwassergrenzwerte von Na^+ (0,25 g/l) und Cl^- (0,2 g/l) wird für die vorliegenden Szenarien die Salinität von 0,25 g/l zur Auswertung definiert. Die sich so ergebende Umhüllende um Bereiche höherer Konzentration wird als vom Salzwasser beeinflusster Bereich definiert.

3.7 Gasausbreitung an einem norddeutschen Beispielstandort

3.7.1 Standortbeschreibung

Auf der Basis eines vom schleswig-holsteinischen Landesamt für Landwirtschaft, Umwelt und ländliche Räume (LLUR) zur Verfügung gestellten Datensatzes wird ein stratigraphisches Modell der Schichtgrenzen im Programm PetraSim erstellt (Thunderhead Engineering, 2011). Es zielt darauf ab, an einem Standort mit komplexer Geologie den Einfluss von großräumigen Strukturen auf die Gasmigration zu untersuchen. Das Modellgebiet liegt geographisch im Raum Quickborn/Elmshorn und hat eine Nord-Süd Erstreckung von etwa 30 km und eine Ost-West-Erstreckung von rund 24 km. Das Modellgebiet hat eine maximale Mächtigkeit von 600 m und beinhaltet stratigraphisch Schichten des Tertiärs und Quartärs.

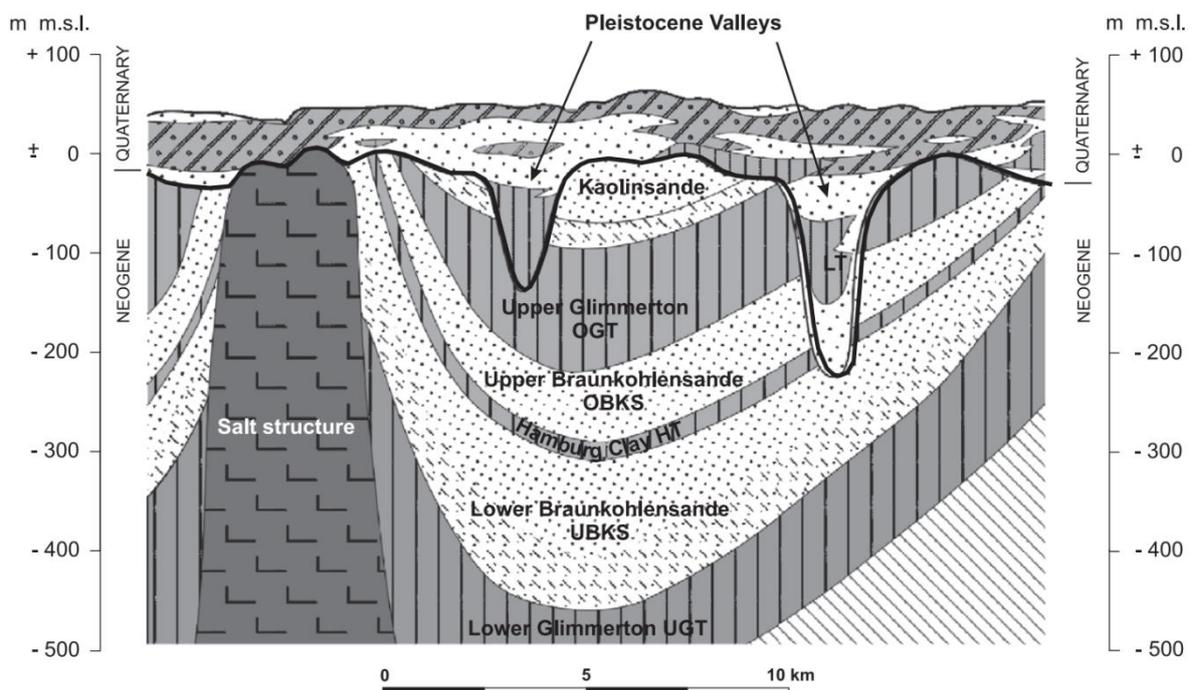


Abb. 3-15: Charakteristische geologische Struktur in Norddeutschland, mit Salzstruktur, den tertiären Schichtfolgen und Rinnenstrukturen; Hydraulisch undurchlässige Ton und Mergelschichten in grau, hydraulisch durchlässige Schichten in hellgrau (Gabriel et al., 2003)

Geprägt ist die oberflächennahe Geologie Norddeutschlands vor allem durch glaziale Prozesse der Eiszeiten Elster, Saale und Weichsel (Wiederhold et al., 2001; Gabriel, 2003). Die glaziofluvialen Sedimente sind durch wechselnde Ablagerungs- und Erosionsprozesse stark heterogen. So ist eine regional stratigraphische und geologische Gliederung meist unmöglich.

Durch das Abschmelzen von Gletschern wurden die subglazialen Rinnen in die tertiären Einheiten erodiert und mit fluvialen Sedimenten gefüllt (Abb. 3-15). Das Modellgebiet wird von der Ellerbecker Rinne durchzogen, die einen NW-SE Verlauf hat (Abb. 3-16).

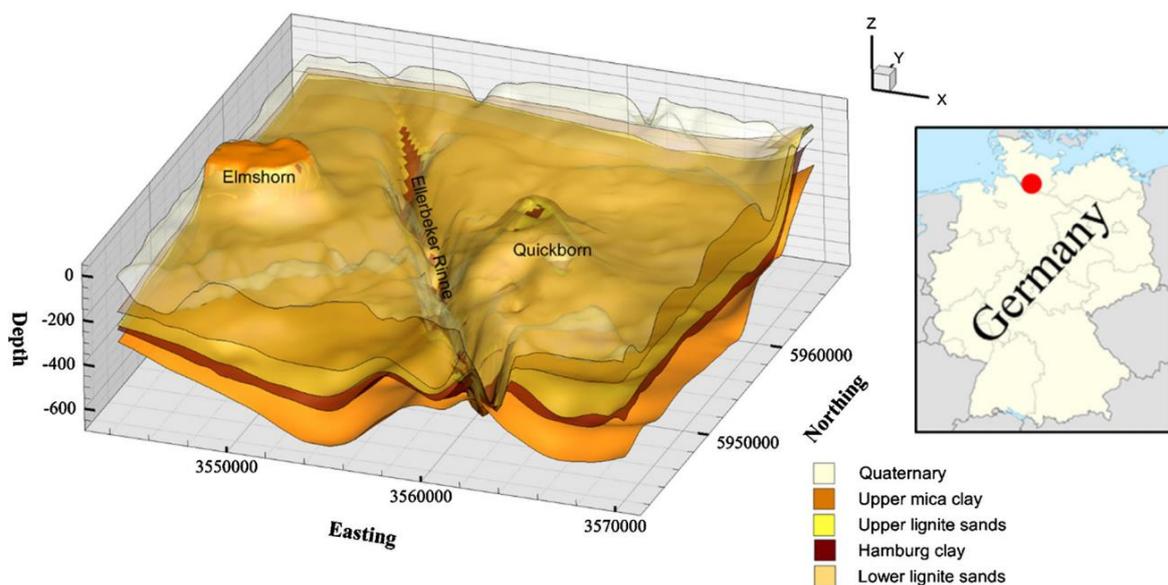


Abb. 3-16: Geostruktur des Untergrundes am Standort Elmshorn (al Hagrey et al., 2016)

Ein weiteres im Modell implementiertes typisch, norddeutsches Phänomen sind Salzstöcke. Die im Perm durch Evaporation des Zechsteinmeeres abgelagerten Salze sind durch die Auflast der tertiären Sedimente und der geringeren Dichte des Salzgesteines als die des hangenden Sedimentes aufgestiegen und haben in Schleswig-Holstein zur Entstehung von Salzstrukturen geführt. Dies führt zum Aufschleppen der ehemals söhlig abgelagerten tertiären Schichten, so dass sich an den Flanken der Salzstöcke und Salzmauern Fallenstrukturen für Erdgase und Erdöl bildeten. Diese Fallenstrukturen eignen sich zur Speicherung der im Rahmen der Energiewende diskutierten Gase. Ebenfalls können diese Gase in Salzkavernen innerhalb von Salzstöcken gespeichert werden. Im betrachteten Modellgebiet befinden sich je ein Salzstock bei Elmshorn und Quickborn.

Das Tertiär untergliedert sich in die stratigraphischen Einheiten (vom Liegenden ins Hangende, Abb. 4-16):

- Oberer Glimmerton (GT)
- Oberer Braunkohlesand (OBKS)
- Hamburger Ton (HT)
- Unterer Braunkohlesand (UBKS)

3.7.2 Numerisches Modell

Die zuvor beschriebene Geologie des Standortes muss für das Modell zur Simulation des Gas-transportes stark vereinfacht werden: Zum einen, weil die einzelnen Einheiten sedimentologisch und damit in ihren hydraulischen Eigenschaften stark heterogen sind; zum anderen, weil die Datendichte für eine Beurteilung der Heterogenität zu gering ist. Daher wurde jede der fünf geologischen Einheiten intern als homogen betrachtet und mit einem repräsentativen Parameterdatensatz ins Modell implementiert. Die Parameterdatensätze selbst wurden nach Wiederhold et al. (2001) mit Hilfe von Literaturdaten, Bohrdaten und hydraulischen Tests ermittelt (Tab. 3-2). Geologische Mikrostrukturen und geologische Störungen werden in diesem Modell vernachlässigt.

Tab. 3-2: Hydraulische Parameter, verwendet im Standortmodell Elmshorn (al Hagrey et al., 2016)

Layers	Quaternary	Upper lignite sands	Lower lignite sands	Upper mica clay	Hamburg clay
Effective porosity (-)	0.22	0.36	0.30	0.05	0.05
Permeability (x, y) [m ²]	1.0E-10	1.0E-11	1.0E-10	1.0E-14	1.0E-15
Permeability (z) [m ²]	1.0E-11	1.0E-12	1.0E-11	1.0E-15	1.0E-16
Parameters gas flow	Esposito and Benson (2012)			Delahaye and Alonso (1999)	
Relative permeability:					
Pore size distribution index λ (-)	0.457			0.329	
Residual saturation liquid S_{lr} (-)	0.3			0.17	
Maximum saturation liquid S_{ls} (-)	1			1	
Residual saturation gas S_{gr} (-)	0.15			0.01	
Capillary pressure					
Pore size distribution λ (-)	0.457			0.329	
Residual saturation liquid S_{lr} (-)	0			0	
Inverse datum pressure $1/P_0$ (Pa ⁻¹)	5.11E-04			2.40E-04	
Maximum pressure P_{max} (Pa)	1.00E+07			1.00E+07	
Maximum saturation liquid S_{ls} (-)	0.999			1	

Das Modellgebiet wird durch ein regelmäßiges Modellgitter mit 750000 Zellen diskretisiert. Die Kantenlängen der Gitterelemente betragen in X-, Y-, und Z-Richtung 260 m x 260 m x 10 m.

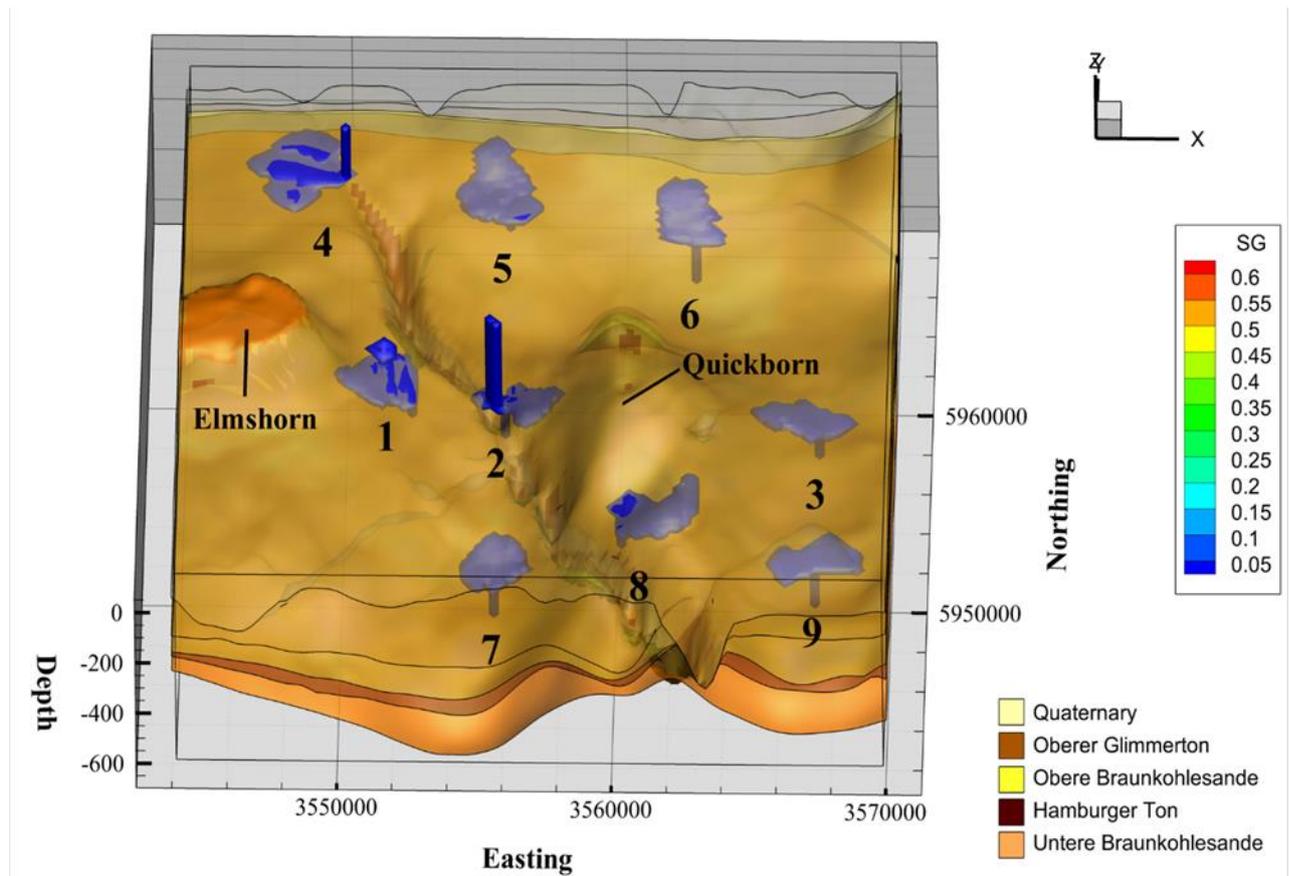


Abb. 3-17: Positionen der Leckagen 1 bis 9 am Standort Elmshorn (Chung, 2015)

Das untersuchte Gas ist Luft*, die Leckagerate beträgt 1 kg/s über einen Zeitraum von 25 Jahren. Die Leckagepositionen sind der Abb. 3-17 zu entnehmen.

Tab. 3-3: Zusammenfassung der Szenarien

Szenarien	Fluid	Untersuchungsparameter	Parameterspannbreite
radialsymmetrisch Szenarien		Leckagefluid, Leckagerate, Permeabilität, Porosität, Aquiferdruck und Temperatur, für Salzwasser: Salgehalt	± 25 % vom Basismodell
	CO ₂ , H ₂ , CH ₄ , Luft*, Salzwasser		natürlich
	CO ₂ , Salzwasser		0.1m bis 5m
	CO ₂	Gitterdiskretisierung	
einfache 3D-Szenarien			
Strömung und Neigung	CO ₂	Strömungsgeschwindigkeit Aquiferneigung Aquiferneigung im Verhältnis zur Strömungsrichtung Strömungsgeschwindigkeit Aquiferneigung	0m/d bis 5m/d 0m/d bis 0.07m/d 0° bis 3° parallel, senkrecht und entgegengerichtet 0m/d bis 0.5m/d 0° bis 20° parallel, senkrecht und entgegengerichtet
gelöstes und gasförmiges CO ₂	CO ₂	Aquiferneigung im Verhältnis zur Strömungsrichtung Salzkonzentration Strömungsgeschwindigkeit	
Virtueller CLEAN-Standort			
Strömungsmodell		Grundwasserströmungsgeschwindigkeit und Richtung	0.9g/l bis 9g/l
ohne Strömung	CO ₂	Einfluss der Morphologie der Aquiferoberkante	
mit Strömung	CO ₂	Einfluss der Grundwasserströmung auf gelöstes und gasförmiges CO ₂	Leckageposition
Salzwasser	Salzwasser	Salinität, horizontale und vertikale Konzentrationsverteilung	Salinität
Virtueller Elmshornstandort	Luft*	Gestrukturen	Leckageposition

4. Ergebnisse und Interpretation

4.1 Parameter und Sensitivitätsstudie

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Simulationen zur CO₂-Ausbreitung beschrieben, indem die laterale Ausbreitung des gasförmigen CO₂ (CO_{2gas}) und gelösten CO₂ (CO_{2gel}) betrachtet wird. Im Anschluss findet ein Vergleich der Ergebnisse der Szenarien der Gase CO₂, CH₄, H₂ und Luft* im Rahmen der Sensitivitätsanalyse statt.

4.1.1 Basiszenario

Das gasförmige CO₂ dringt über die Leckage an der Basis des Aquifers in diesen ein. Wenn das Gas mit dem Grundwasser in Kontakt kommt, wird es im Wasser gelöst bis eine Übersättigung eintritt und sich eine Gasphase bildet. Die Gasphase migriert dichtegetrieben aufwärts bis sie an die Oberkante des Aquifers gelangt. Im Basiszenario hat das Gas eine Aufstiegs geschwindigkeit von 0,38 m/Tag und erreicht nach 26 Tagen die Oberkante. Der Beobachtungspunkt (OP) befindet sich senkrecht über der Leckageposition direkt unterhalb des hangenden Grundwasserstauers. Dort akkumuliert das Gas, und seine Sättigung ist an diesem Punkt mit 31 %, gemessen nach einem Jahr Simulationszeit, am höchsten und nimmt mit zunehmender Entfernung vom OP ab (Abb. 4-1 und 4-2). Mit steigender Gassättigung im Porenraum erhöht sich die relative Permeabilität der Gasphase und die Kapillardrücke nehmen ab. Überschreitet die relative Permeabilität der Gasphase die des Porenwassers, kommt es zur horizontalen Ausbreitung unterhalb des Stauers. Danach breitet sich das CO₂ radial unter dem hangenden Grundwasserstauer aus.

Bei konstanter Leckagerate nimmt die Fläche des Phasenkörpers über die Zeit zu. Nach einer Simulationszeit von einem Jahr beträgt der Radius 48,5 m. Da die Grundwasserströmung nicht betrachtet wird und Dispersion und Diffusion vernachlässigbar klein sind, ist die laterale Ausbreitung von CO_{2gas} und CO_{2gel} in den radialsymmetrischen Szenarien nahezu gleich.

Die Akkumulation des Gases im Bereich des Beobachtungspunktes hat eine Druckerhöhung zur Folge, woraus ein Anstieg der hydraulischen Höhe um 0,21 m folgt.

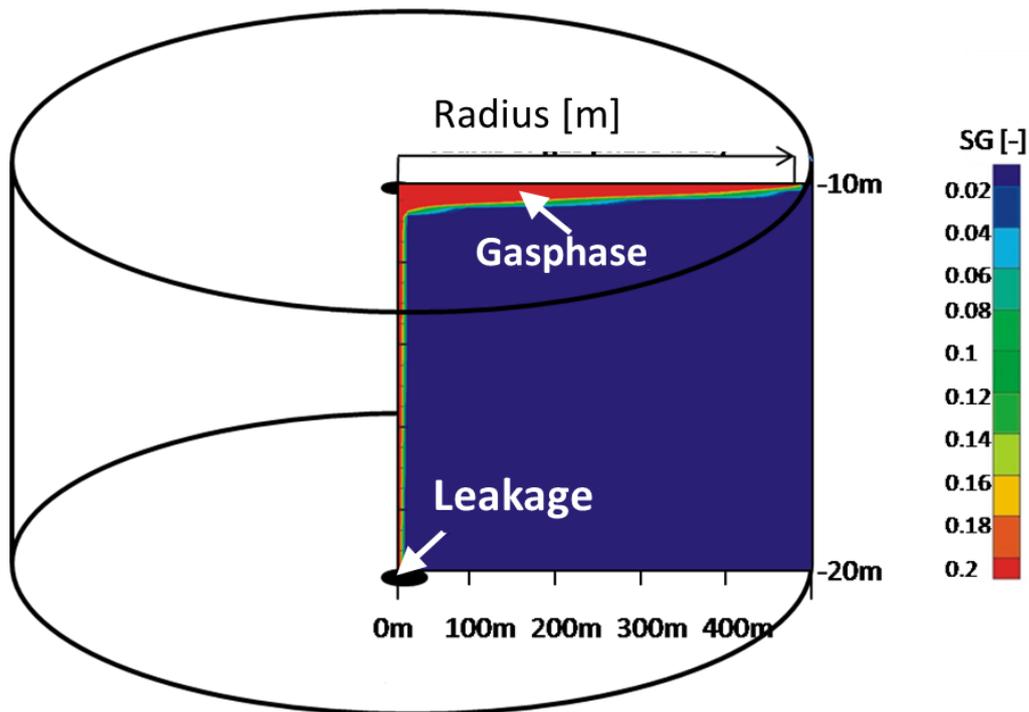


Abb. 4-1: Schematische Darstellung der Modellgeometrie und der Verteilung der Gassättigung (SG). Das Gas steigt dichtegetrieben aufwärts, sammelt sich unterhalb des Grundwasserstauers und breitet sich von dort ausgehend radialsymmetrisch aus (nach Wiegers et al., 2012)

Der Anstieg der hydraulischen Höhe entsteht, weil das aufsteigende Gas das Wasser verdrängt. Im Nahbereich des Aufstiegskanals wird die Druckerhöhung am größten. Sie bewirkt, dass sich ein Druckpotential und eine Strömung der Fluide weg vom Zentrum des Gasphasenkörpers einstellen. Mit zunehmendem Radius des Phasenkörpers nimmt die Druckerhöhung, analog zu der Gassättigung, ab. Angenommen, die Leckage stoppt, und es gelangt kein weiteres Gas in das Modellgebiet, so wird sich mit der Zeit das Gas im Wasser lösen und das Druckpotential wieder angleichen. Die Fluidströmungen werden sich verlangsamen und, wenn das Druckpotential wieder ausgeglichen ist, zum Erliegen kommen.

Die Lösung von CO_2 im Wasser wird in der Simulationssoftware TOUGH2 als Gleichgewichtsreaktion betrachtet. Ab einer Simulationszeit von 26 Tagen erreicht die Konzentration von $\text{CO}_{2\text{gel}}$ beim Erreichen des Beobachtungspunktes $4,6 \times 10^{-4}$ kg/kgw und bleibt über die Simulationszeit konstant.

4.1.2 Variation der Leckagerate

Ist die Leckagerate kleiner als $1,16 \times 10^{-5}$ kg/s wird das CO_2 gelöst, bevor es die Aquiferoberkante erreicht. Es bildet sich innerhalb eines Jahres kein Gasphasenkörper unter dem Stauer.

Ab einer Leckagerate von $1,16 \times 10^{-5}$ kg/s erreicht die Gasphase die Aquiferoberkante nach 190 Tagen Simulationszeit. Nach einem Jahr beträgt der Radius von $\text{CO}_{2\text{gas}}$ 8,5 m (Abb. 4-2).

Bei der höchsten verwendeten Leckagerate ($1,16 \times 10^{-2}$ kg/s) erreicht die Gasphase die Aquiferoberkante einen Tag nach Beginn der Leckage, nach einem Jahr einen Radius von 461 m (Abb. 4-2).

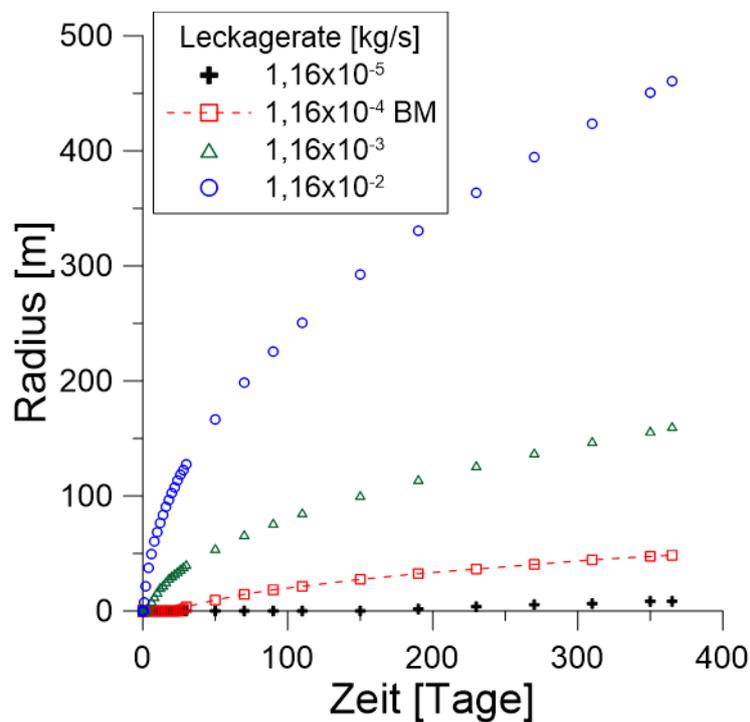


Abb. 4-2: Radius des Gasphasenkörpers über die Zeit in Abhängigkeit der Leckagerate (nach Wiegers et al, 2012)

Am Beobachtungspunkt steigt die Gassättigung mit zunehmender Leckagerate von 19 % auf 69 %. Durch den Druckanstieg erhöht sich die Wassersäule von 0,14 m auf 0,77 m. Die Konzentration des gelösten CO_2 erhöht sich von $4,4 \times 10^{-4}$ kg/kgw auf $2,4 \times 10^{-2}$ kg/kgw, was auf die Zunahme des Aquiferdrucks durch die Zunahme der Gassättigung am OP zurückzuführen ist. Durch die Druckerhöhung steigt die maximale Löslichkeit des CO_2 im Wasser. Je höher die Leckagerate, desto größer wird der Radius des Gasphasenkörpers. Weiterhin steigen die Gassättigung und der Druck im Porenraum an. Der Druckanstieg erhöht die Lösung von CO_2 im Wasser.

4.1.3 Einfluss des Aquiferdrucks

Befindet sich der Wasserspiegel des Grundwassers in der Höhe eines Druckpotentials von 0 m, so erreicht die Gasphase nach einem Jahr Simulationszeit einen Radius von 72 m (Abb. 4-3 a). Befindet sich die Aquiferoberkante in einer Potentialtiefe von 500 m, beträgt der Radius nach einem Jahr 0,25 m. Die Aufstiegs geschwindigkeit des Gases verringert sich von 0,63 m/Tag auf 0,03 m/Tag. Dies liegt zum einen daran, dass die Gasphase mit zunehmendem Druck komprimiert wird; zum anderen nimmt mit zunehmendem Druck die Löslichkeit des CO₂ im Wasser zu, womit die Gasphase kleiner wird (Duan et al., 2006; Fahrner et al., 2012b).

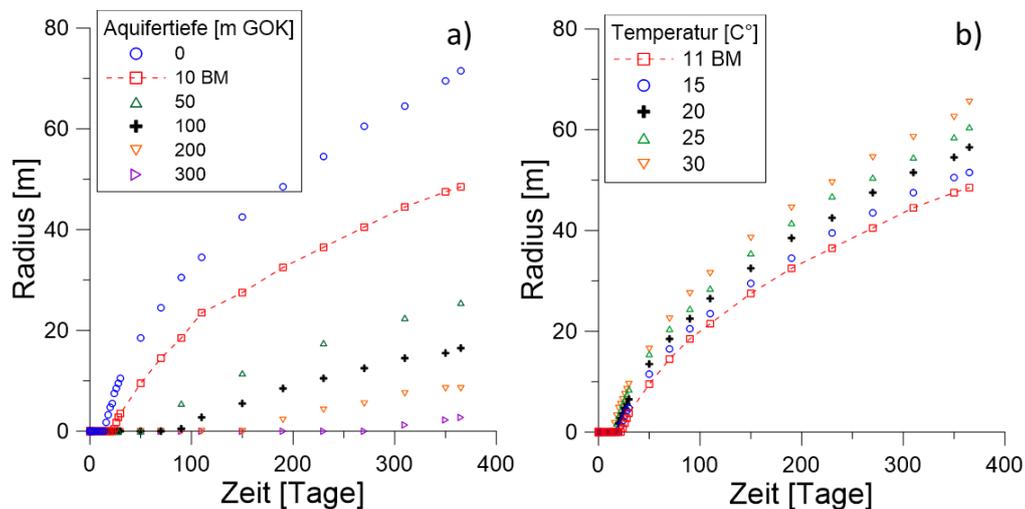


Abb. 4-3: Radius des Gasphasenkörpers über die Zeit in Abhängigkeit von der Aquifertiefe (a) und der Aquifertemperatur (b) (nach Wiegers et al., 2012)

Bei einer Wassersäule von 0 m beträgt die Gassättigung am Beobachtungspunkt 40 %. In einer Tiefe von 500 m verringert sie auf 10 %. Entsprechend ist die Konzentration des CO_{2gel} bei 500 m Tiefe mit $1,04 \times 10^{-1}$ mol/l höher als bei einer Tiefe von 0 m mit $2,2 \times 10^{-3}$ mol/l. In Anlehnung an das ideale Gasgesetz und mit der Annahme, dass die Temperatur konstant bleibt, ändert sich das Volumen des Gases invers proportional zu der Änderung des initialen Aquiferdrucks. Je tiefer die Gasleckage, desto kleiner der Radius des Gasphasenkörpers, da die Lösung von CO₂ im Wasser zunimmt.

4.1.4 Einfluss der Temperatur

Bei Erhöhung der initialen Aquifertemperatur nimmt auch die Ausbreitung des Gasphasenkörpers aufgrund der geringeren Löslichkeit des CO₂ zu (Duan et al., 2006). Nach dem idealen Gasgesetz nimmt das Volumen der Gasphase mit abnehmender Temperatur ab. Bei Annahme

eines konstanten Drucks ergibt sich nach dem idealen Gasgesetz bei einer Temperaturerhöhung um 15 °C eine Vergrößerung des Gasphasenkörpers von lediglich 5,3 %. Nach einer einjährigen Leckagezeit hat der Gasphasenkörper bei einer Temperatur von 11° C eine Ausbreitung von 48,5 m und erreicht 65,5 m bei einer Temperatur von 30 °C (Abb. 4-3 b). Die Konzentration des gelösten CO₂ beträgt nach einem Jahr bei 11 °C, gemessen am Beobachtungspunkt, $4,46 \times 10^{-3}$ mol/l und beim Szenario mit 30 °C $2,49 \times 10^{-3}$ mol/l. Je höher die Temperatur, desto größer wird der Gasphasenkörper.

4.1.5 Einfluss der effektiven Porosität

Die Erhöhung der effektiven Porosität von 10 % auf 40 % ergibt eine Verringerung des Radius von 71 m auf 31 m (Abb. 4-4a). Auch die Aufstiegsgeschwindigkeit verringert sich von 0,8 m/Tag auf 0,1 m/Tag. Zurückzuführen ist dies auf das zur Verfügung stehende Porenvolumen in der Sedimentmatrix und damit auf die volumenbedingte laterale Ausbreitung; damit wird mit größerem Porenvolumen der Gasphasenkörper kleiner.

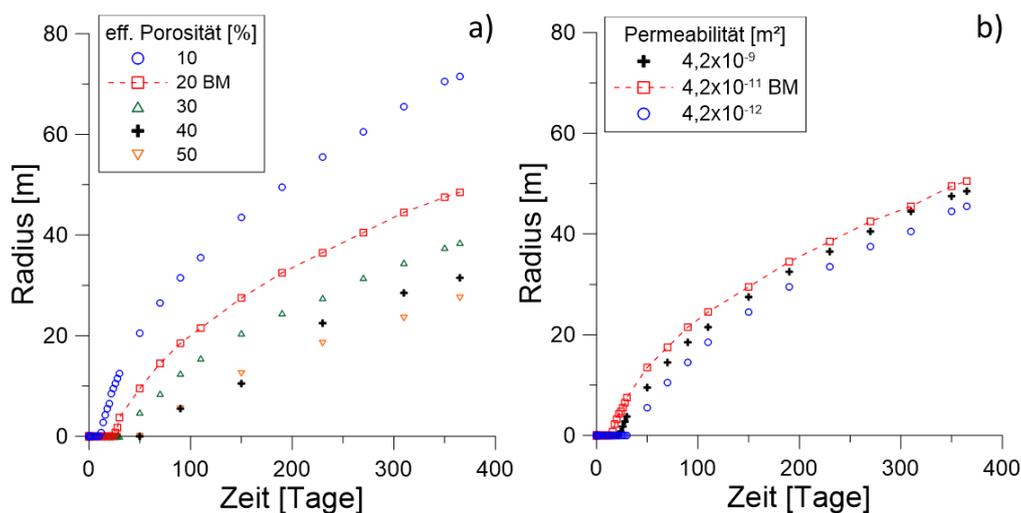


Abb. 4-4: Radius des Gasphasenkörpers über die Zeit in Abhängigkeit von der Porosität (a) und der Permeabilität (b) (nach Wiegers et al., 2012)

4.1.6 Einfluss der horizontalen Permeabilität

Bei einer Permeabilität von $4,2 \times 10^{-19}$ m² beträgt der Radius nach einem Jahr Leckagezeit 50,5 m; bei $4,2 \times 10^{-12}$ m² beträgt er 45,5 m (Abb. 4-4 b). Die Gassättigung nimmt am Beobachtungspunkt von 20 % auf 45 % zu mit der Folge, dass der Druck von 0,3 m auf 0,5 m Wassersäule zunimmt. Entsprechend wird mehr CO₂ im Wasser gelöst.

In den betrachteten homogenen Aquifersystemen zeigt die Permeabilität einen sehr geringen Einfluss auf die Ausbreitung der Gasphase. Wird die Permeabilität geringer, steigt also der hydraulische Widerstand an, und die Strömung wird geringer. Damit wird mehr Gas im Porenraum akkumuliert, der Druck steigt an und es wird mehr CO₂ im Wasser gelöst.

4.1.7 Sensitivitätsanalyse

Die Auswertung der Sensitivität anhand des Parameters m_{25} (vgl. S. 43) zeigt, dass der Zielparаметer Radius auf die Variation der effektiven Porosität ($m_{25} = 0,29$) und die Variation des Aquiferdrucks ($m_{25} = 0,30$) (Abb. 4-5) mit höherer Sensitivität reagieren, gefolgt von der Leckagerate ($m_{25} = 0,28$) und der Temperatur ($m_{25} = 0,14$). Die Permeabilität ($m_{25} = 0,0$) weist in der vorliegenden Studie den geringsten Effekt auf.

Die Leckagerate ist an realen Standorten ein schlecht zu prognostizierender Parameter, zudem liegen hier kaum Erfahrungswerte aus realen Leckagefällen vor. Naturanalogie wie etwa Entgasungen durch vulkanische Aktivität bieten lediglich Anhaltspunkte.

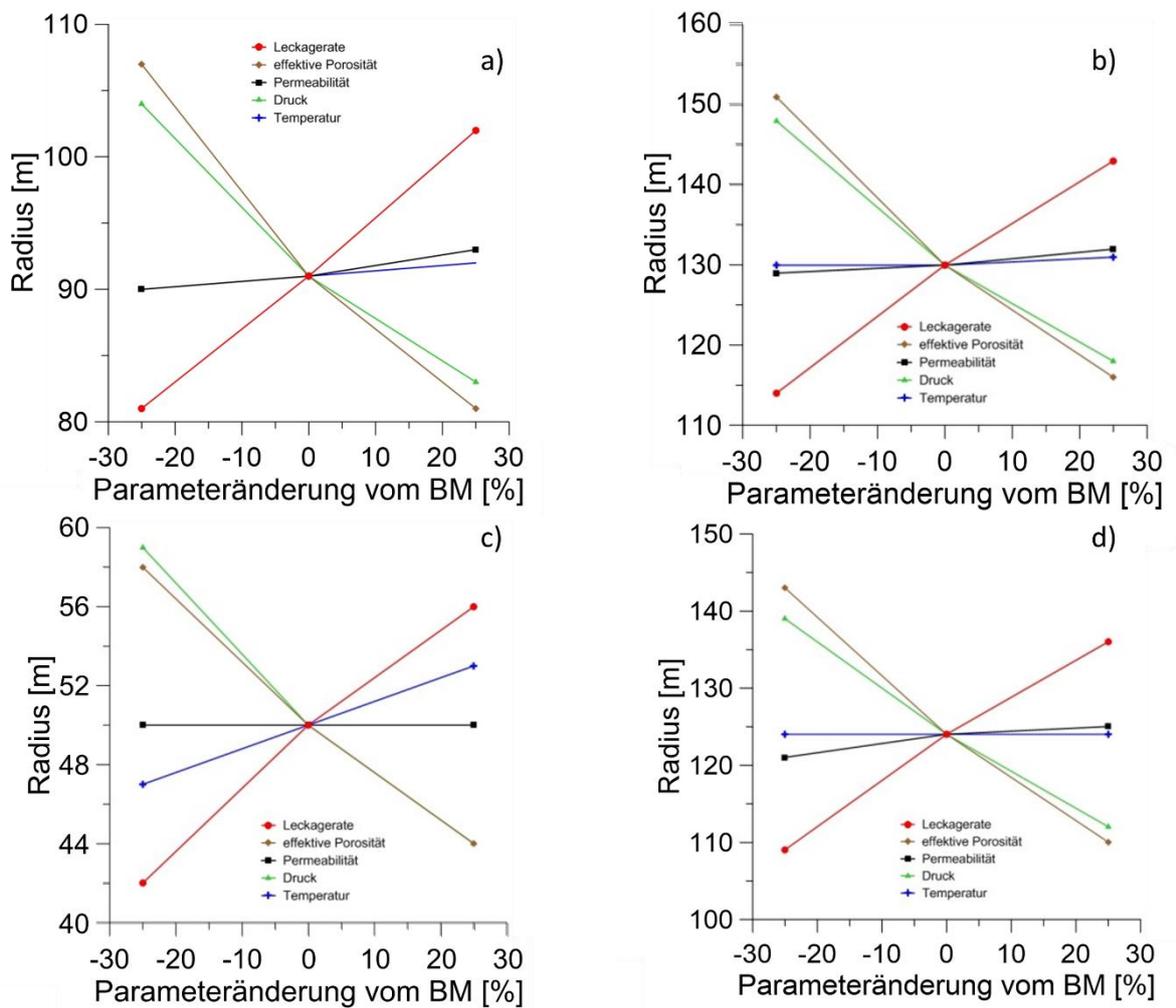


Abb. 4-5: Sensitivitätsanalysen zu den Gasen CO₂ (a), H₂ (b), CH₄ (c) und Luft* (d) im Vergleich

Druck und Temperatur beeinflussen die Löslichkeit des CO₂ im Grundwasser (Duan et al. 2006; Fahner et al., 2012b) und damit das Verhältnis von gasförmigen zu gelöstem CO₂. Ob das CO₂

überwiegend gelöst oder gasförmig vorliegt, hängt in den durchgeführten Szenarien hauptsächlich vom initialen Aquiferdruck und damit von der Formationstiefe ab. Der initiale Aquiferdruck hat einen signifikanteren Einfluss auf Löslichkeit und Ausbreitung der Gasphase als die Temperatur. Der Effekt der Temperatur ist in Anbetracht der Temperaturerhöhung, die sich aufgrund des geothermischen Gradienten ergibt, geringer; auf 500 m Tiefenunterschied sind es etwa 15 °C. Druck und Temperaturbedingungen sind für einen gewählten Beobachtungshorizont an einem realen Standort gut zu bestimmen, weil die Formationstiefe bekannt ist; zudem können Informationen über Grundwassermessstellen gewonnen werden.

4.1.8 Vergleich der Gase Kohlenstoffdioxid, Luft*, Wasserstoff und Methan

Der Vergleich der Ergebnisse der Basisszenarien der Gase Kohlenstoffdioxid, Luft*, Wasserstoff und Methan zeigt, dass der Radius der Gasphasenkörper nach einem Jahr Simulationszeit vornehmlich von der Leckagerate abhängt. Unter Normalbedingungen haben die einzelnen Gase zwar identische Leckageraten, aufgrund der Kompressibilität zeigen die Gasphasen bei gleichbleibendem Wasserdruck aber unterschiedliche Radien (Tab. 4-1, Abb. 4-5).

Tab. 4-1: Ergebnisse der Sensitivitätsanalysen und die Kompressibilität der Gase Wasserstoff, Luft*, Methan und CO₂

Gas	Wasserstoff	Luft*	Methan	CO ₂
Radius Basismodell [m]	130	124	91	50
rel. Kompressibilität [$\cdot 10^3 \text{ Pa}^{-1}$] bei 0-0,1 MPa & 0°C	3,63	-2,47 (für N ₂)	-11,8	-160
m₂₅ Druck	0,23	0,22	0,23	0,30
m₂₅ eff. Porosität	0,27	0,27	0,29	0,29
m₂₅ Leckagerate	0,22	0,22	0,23	0,28
m₂₅ Temperatur	0,01	0,01	0,02	0,14
m₂₅ Permeabilität	0,05	0,03	0,02	0,00

Wie beim CO₂ reagieren auch die anderen Gase ähnlich sensitiv auf die Variation der Parameter K, n_e, P, T und der Leckagerate. Der Effekt auf den Radius des Gasphasenkörpers ist im Vergleich zwischen den einzelnen Gasen zu vernachlässigen, mit Ausnahme der Parameter, welche die Löslichkeit der Gase im Wasser beeinflussen. Druck und Temperaturänderungen beeinflussen die Ausbreitung des gasförmigen CO₂ mehr als bei den anderen Gasen, da CO₂ die größte Löslichkeit im Wasser aufweist (z.B. Duan et al. 2006).

Die Parameterstudie zeigt, dass der Zielparameter Radius der Gasphasenkörper mit Erhöhung der Parameter Porosität, Druck und Temperatur kleiner wird. Die Erhöhung der Permeabilität und der Leckagerate bewirken hingegen größere Radien. Der Sensitivitätsanalyse ist zu entnehmen, dass die Sensitivität der Parameter in folgender Reihenfolge abnimmt: Leckagerate, Porosität, Druck, Temperatur und Permeabilität. Der Vergleich der Gase CO_2 , H_2 , CH_4 und Luft zeigt, dass die Radien mit der Kompressibilität korrelierten. Das CO_2 unterscheidet sich wesentlich von den Gasen H_2 , CH_4 und Luft durch seine Löslichkeit und sein Lösungsverhalten, da es im Wasser dissoziiert.

4.2 Auswirkung der räumlichen Diskretisierung auf die Ausbreitung der Gasphase

Mit abnehmender Zellgröße und entsprechend zunehmender Anzahl der Rechenknoten steigt die Modelllaufzeit von 5 Sekunden bei einer Zellgröße von 5 m auf eine Laufzeit von 8,1 Tagen bei einer Zellgröße von 0,1 m, wobei die Laufzeit von der Leistung des verwendeten Computers abhängt und entsprechend technisch weiter optimiert werden kann. Der Radius des Gasphasenkörpers wächst von 8,5 m auf 84,45 m an, wobei der Kurvenverlauf darauf hin deutet, dass er sich einem Grenzwert annähert (Abb. 4-6). Dieser Grenzwert entspricht, wenn die Zelle das gesamte Gasvolumen aufnehmen kann, der Zellgröße. Mit dem Zellvolumen verkleinert sich auch das Volumen, das dem Gas in der Zelle zur Verfügung steht. Das Gas verteilt sich entsprechend auf mehr Zellen und der Radius des Gasphasenkörpers wird bei abnehmender Zellgröße größer. Da das Gas bestrebt ist aufzusteigen und sich in den obersten Zellen sammelt, wird die Mächtigkeit des Phasenkörpers geringer.

Welche Diskretisierung nötig ist, damit eine Verkleinerung der Zellen keinen Einfluss mehr auf das Simulationsergebnis hat, kann anhand der vorliegenden Simulationen nicht gezeigt werden. Theoretisch betrachtet würde die Verkleinerung des Zellvolumens zu immer größeren und geringmächtigeren Phasenkörpern führen. Damit wird das Ergebnis immer von der Wahl der Diskretisierung abhängen. Überlegungen sollten dahin führen, dass das Modellgitter nicht nur der Problemstellung angepasst wird, sondern auch eine Abschätzung des auftretenden Fehlers vorzunehmen ist, um entsprechend quantitative Aussagen zu einem Standort treffen zu können.

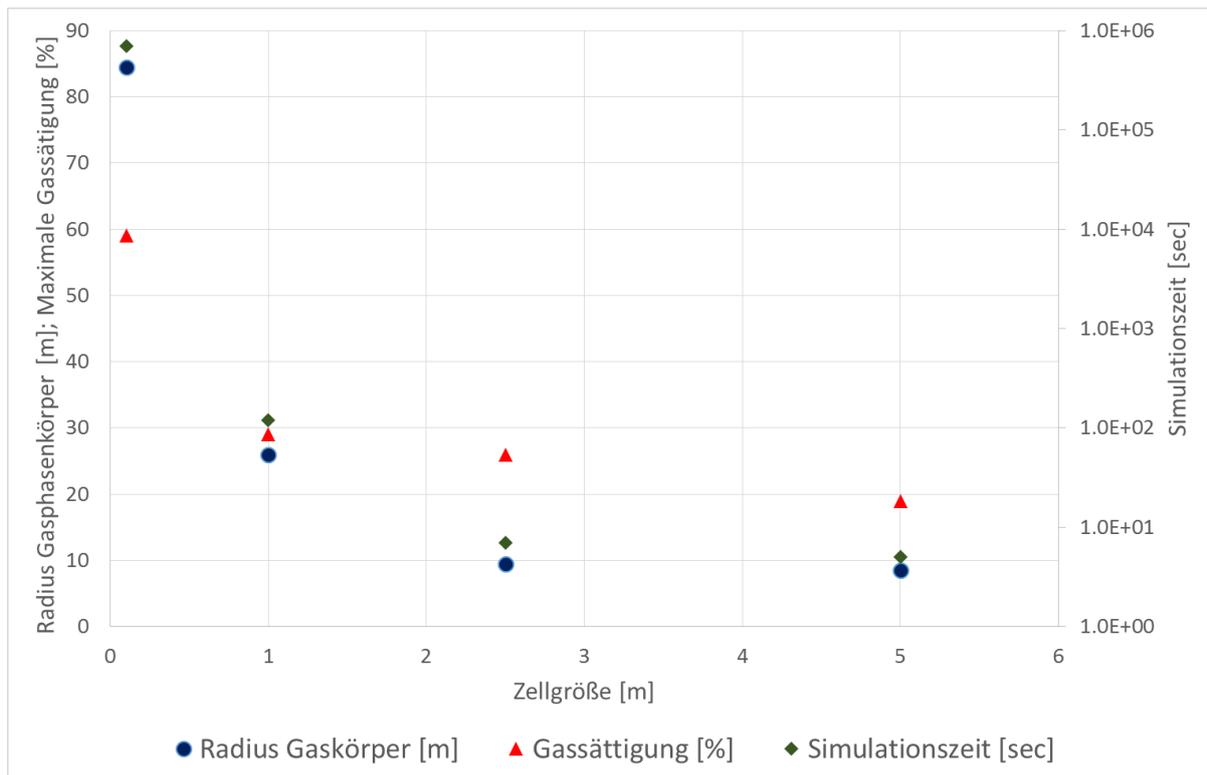


Abb. 4-6: Radius des Gasphasenkörpers, maximale Gassättigung (Primärachse) und Simulationszeit (Sekundärachse) in Abhängigkeit von der Zellgröße

Die maximale Gassättigung, gemessen in der Zelle direkt über dem Aufstiegskanal des Gases beträgt bei 5 m Zellgröße 19 % und bei einer Zellgröße von 0,1 m 59 % (Abb. 4-6). Die Änderung der Gassättigung impliziert, dass bei kleineren Zellen mehr Gas akkumuliert wird, was wie bei der zuvor angeführten Parameterstudie und den Sensitivitätsanalysen hinsichtlich des Gases CO₂ zu einem erhöhten Lösungsverhalten führt. Auf die Interpretation von Simulationsergebnissen übertragen bedeutet dies: Wenn das Mehrphasenmodell an ein geochemisches Modell gekoppelt wird, werden die geochemischen Folgereaktionen fehlerhaft eingeschätzt.

4.3 Salzwasserleckagen

4.3.1 Einfluss der Aquifer- und Leckageparameter

Erwartungsgemäß breitet sich das Salzwasser an der Basis des Aquifers aus (vgl. Bear & Bachmat, 1999), zum einen, weil die Leckage sich an der Basis des Grundwasserleiters befindet

und nur eine geringe Vermischung des Salzwassers mit dem Süßwasser in der Vertikalen stattfindet; zum anderen, weil Salzwasser sich dichtegetrieben unter dem Süßwasser einschichtet. Von der Leckage ausgehend breitet es sich in einem planaren Aquifer ohne Grundwasserströmung radialsymmetrisch aus (Abb.1c). Nach einem Jahr Simulationszeit beträgt der Radius des Salzwasserkörpers im Basismodell (BC) 28 m (Abb. 4-7a).

Die Variation der Leckagerate innerhalb des verwendeten Wertebereichs ergibt nach einem Jahr Simulationszeit eine Spannbreite des Radius zwischen 20 m bis 43 m. Der Radius nimmt erwartungsgemäß mit der Leckagerate zu (Abb. 4-7a).

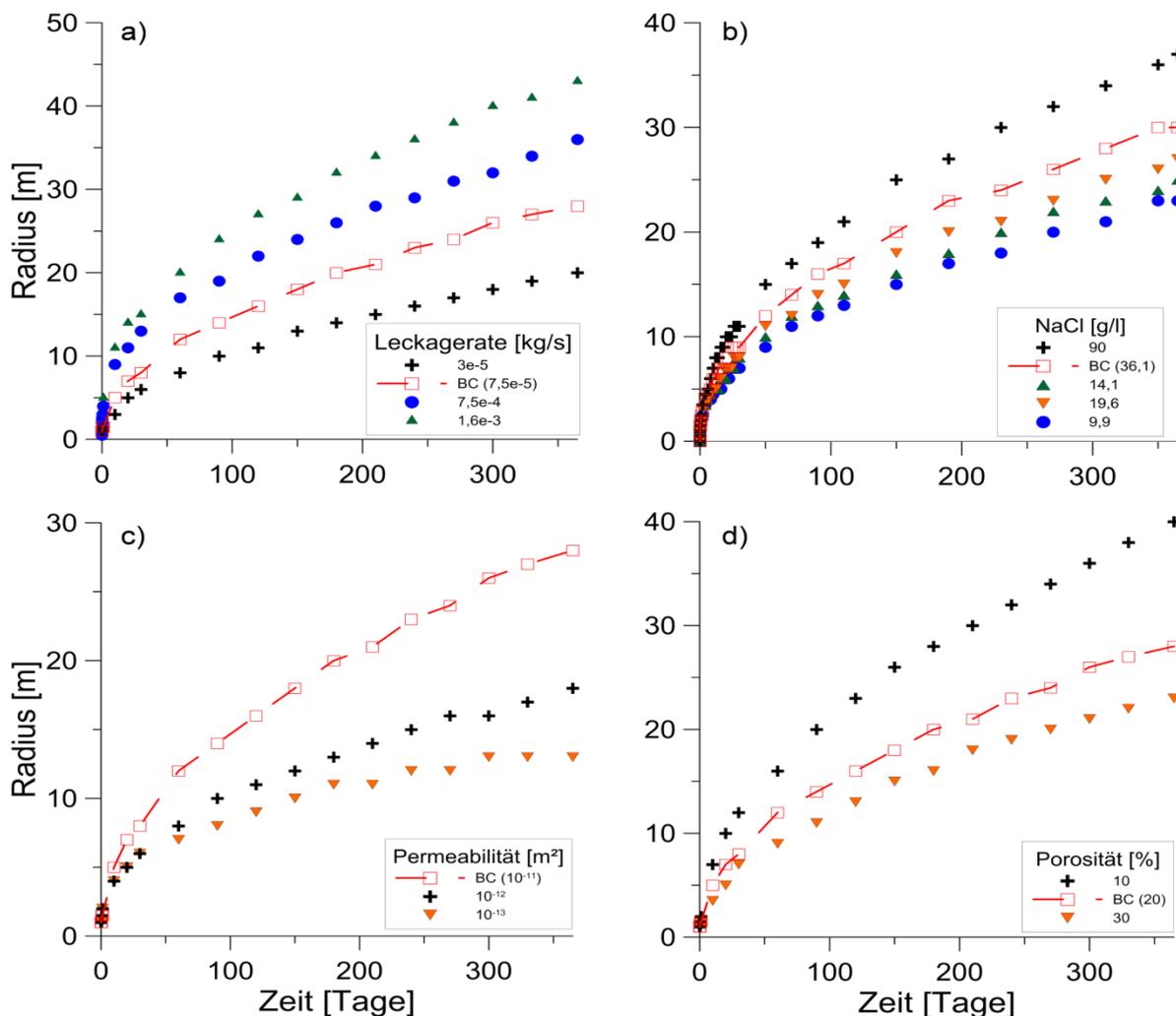


Abb. 4-7: Einfluss der a) Leckagerate, b) Salzkonzentration, c) Permeabilität und d) effektiven Porosität auf den Radius des entstehenden Salzwasserkörpers einer Salzwasserintrusion (Wiegiers & Schäfer, 2015)

Wird die Dichte des Salzwassers erhöht, kommt es zu einer Vergrößerung des Salzwasserkörpers, da die höhere Salzkonzentration zu einer schnelleren Überschreitung der definierten Grenzkonzentration und zu verstärkter Vermischung führt. Der Radius variiert zwischen 22 m bei der geringsten untersuchten Dichte und 38 m bei der höchsten Salzkonzentration –und somit um 16 m um den Radius des Basismodells ($R_{BM} = 28$ m) (Abb. 4-7b). Eine geringere Porosität ergibt eine Zunahme des Radius, da sich das zur Verfügung stehende Porenvolumen verringert. Innerhalb der verwendeten Parametervariation schwankt der Radius um 21 m (Abb. 4-7d). Die Variation der Permeabilität über den gewählten Parameterraum zeigt eine Schwankung des Radius um 15 m (Abb. 4-7c). Druck und Temperatur und damit der Einfluss der Aquifertiefe zeigen bei konstanter Leckagerate keinen signifikanten Effekt auf den Radius des Salzwasserkörpers (nicht dargestellt), da Dichteunterschiede zwischen Salz- und Süßwasser unter den angenommenen Bedingungen nicht von Druck- und Temperaturbedingungen abhängen.

4.3.2 Sensitivitätsanalyse zur Salzwasserausbreitung

Aus der lokalen Sensitivitätsanalyse (Abb. 4-8) ergibt sich durch eine visuelle Auswertung und durch die Berechnung des Sensitivitätsindex m_{25} (vgl. S. 43), dass die Porosität des Aquifers der sensitivste Parameter im Hinblick auf den Radius des Salzwasserkörpers ist ($m_{25} = 0,29$), gefolgt von der Leckagerate des Salzwassers mit $m_{25} = 0,25$ und der Permeabilität mit $m_{25} = 0,11$. Bei ohnehin schon kleinen Porositäten ($< 20\%$) zeigt eine Änderung des Parameters eine stärkere Sensitivität als bei Porositäten $> 20\%$ (Abb. 4-8).

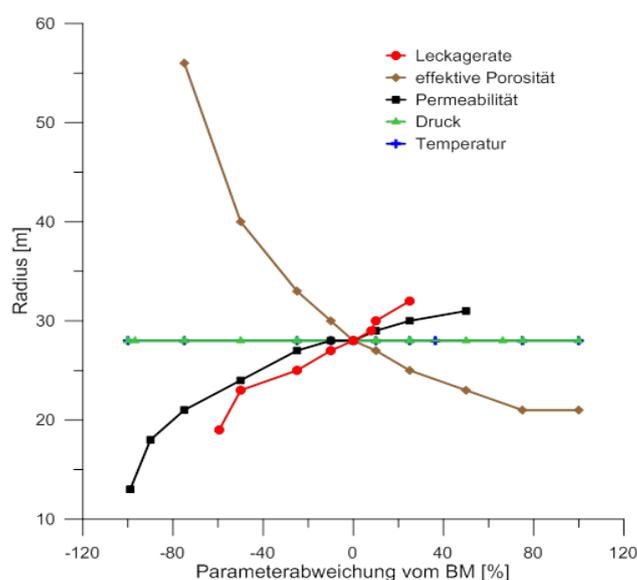


Abb. 4-8: Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse über das gesamte Parameterspektrum (Tab. 5-1) (Wiegiers & Schäfer, 2015)

Die Permeabilität zeigt – etwas abgeschwächt und invers – ein ähnliches Verhalten wie schon bei der Porosität zu sehen ist (vgl. Abb. 4-8). Die Unregelmäßigkeit im Verlauf der einzelnen Kurven wird durch die Diskretisierung hervorgerufen.

4.4 Einfluss von Grundwasserströmung und Aquiferneigung auf die Ausbreitung von gelöstem und gasförmigen CO₂ sowie von Salzwasser

4.4.1 Basismodell: CO₂-Migration in einem söhligem Grundwasserleiter ohne Grundwasserströmung

Im Basismodell dringt, wie auch bei den radialsymmetrischen Szenarien, gasförmiges CO₂ über eine Leckage an der Basis in den Aquifer ein, löst sich zunächst im Wasser, bis die maximale CO₂ - Lösung im Wasser erreicht ist. Im Basismodell sind das 4,5 g/l. Es kommt zu einer Übersättigung und die entstehende Gasphase steigt dichtegetrieben bis unter den hangenden Grundwasserstauer auf. Im Basisszenario erreicht die Gasphase die Aquiferoberkante nach 10 Tagen.

Das gasförmige CO₂ akkumuliert sich zunächst unter dem Stauer und breitet sich von dort aus. Im Basismodell verhält sich die laterale Ausbreitung wie bei den radialsymmetrischen Szenarien. Mit fortlaufender Zeit nimmt die Fläche des Gasphasenkörpers zu und erreicht nach einem Jahr Simulationszeit eine Ausdehnung von 709 m² (Abb. 4-11). Die maximale Gassättigung im Porenraum erreicht 21 %. Da sich das CO₂ aus der Gasphase in das Porenwasser löst, sind die Ausdehnung der Gasphase und der Fahne des gelösten CO₂ gleich groß (Abb. 4-9 und 4-10).

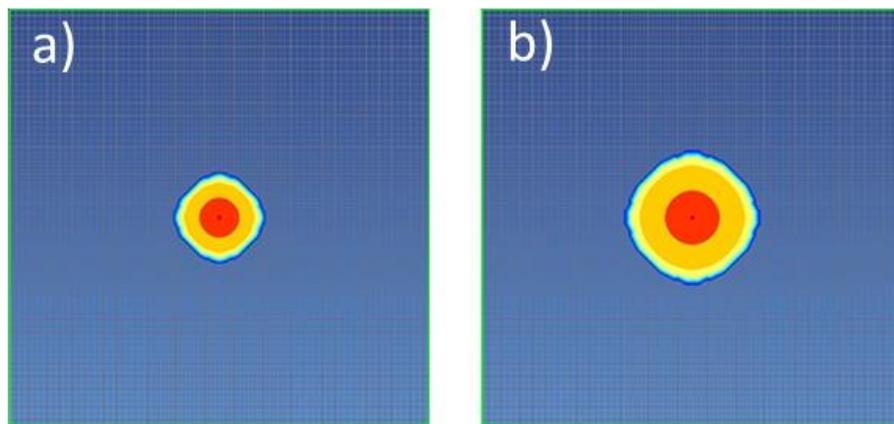


Abb. 4-9: Fläche des CO₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren (a) und 1 Jahr (b)

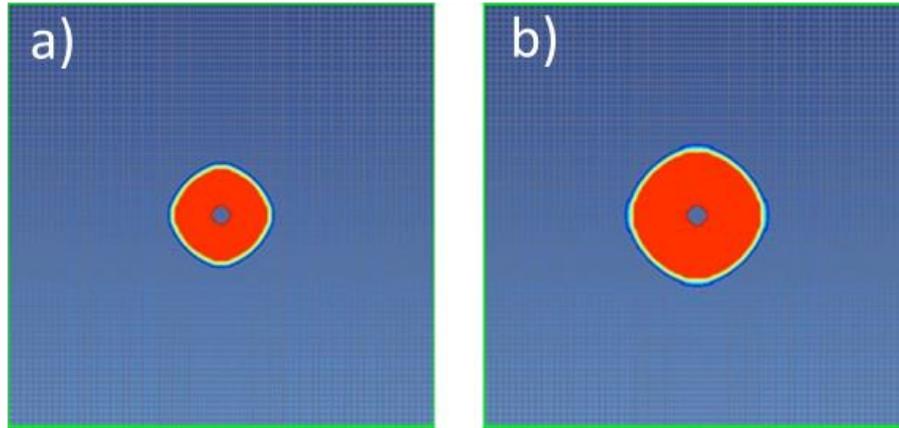


Abb. 4-10: Fläche des CO₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren (a) und 1 Jahr (b)

4.4.2 Einfluss der Neigung eines hangenden Grundwasserstauers

Ist der hangende Stauer geneigt, erreicht das gasförmige CO₂ ebenfalls nach 10 Tagen den hangenden Stauer. Der dichtegetriebene Gastransport führt dazu, dass der Gasphasenkörper in Richtung des steilsten Gradienten aufwärts migriert, also der Neigung nach oben folgt. (Abb. 4-14). Es zeigt sich, dass mit zunehmender Neigung die gesamte Ausbreitung des Gasphasenkörpers unterhalb des Stauers bei variiertter Neigung nicht größer wird. Dabei wird der Gasphasenkörper in Neigungsrichtung gestreckt (Abb. 4-11).

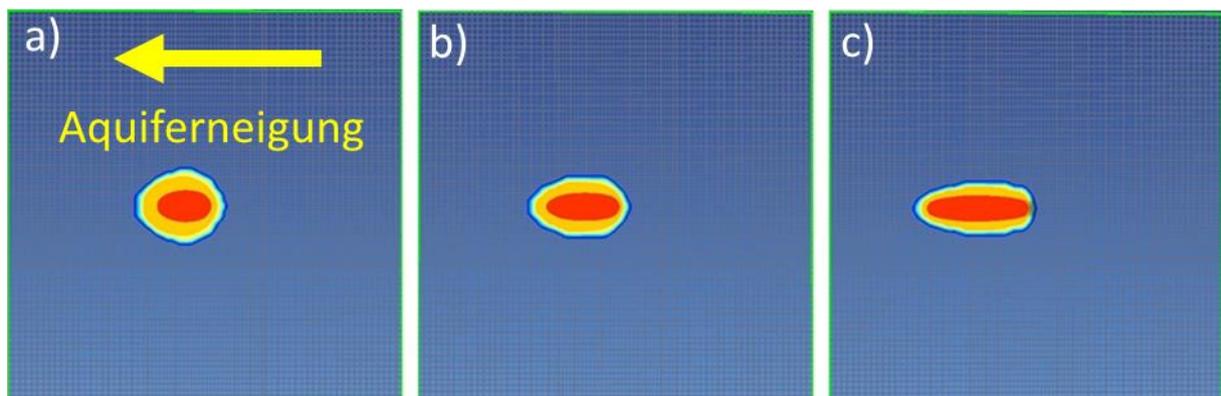


Abb. 4-11: Fläche der CO₂ Gasphasenkörper an der Oberkante des Aquifers nach 0,5 Jahren, bei 0,5° Neigung (a), bei 1° Neigung (b) und 2° Neigung (c)

Der Unterschied zwischen den entstehenden Flächen, bei unterschiedlicher Neigung beträgt nach einem Jahr Ausbreitung maximal 30 m² (Abb. 4-12).

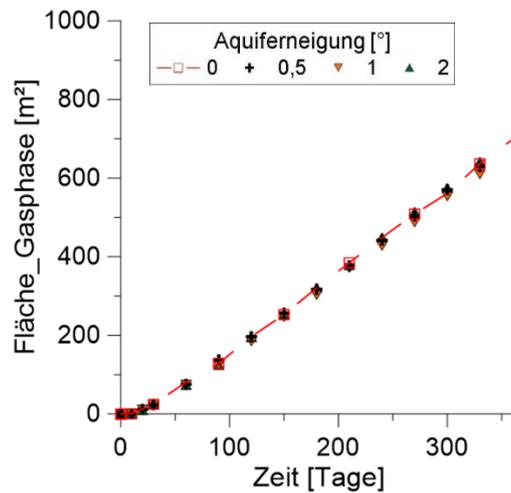


Abb.: 4-12: Ausbreitung der Gasphasenkörper über ein Jahr bei unterschiedlichen Neigungswinkeln des hangenden Grundwasserstauers

Mit zunehmendem Neigungswinkel und ohne Grundwasserströmung wird der Gasphasenkörper in Neigungsrichtung gestreckt. Er wird mit zunehmender Neigung schmaler und länger (Abb. 4-13). In dem Szenario mit einem Neigungswinkel von 2° ist der Phasenkörper ungefähr 50 m lang und 17 m breit. Im Verhältnis zu dem Gasphasenkörper, der sich im Basisszenario bildet, wächst der Gasphasenkörper um etwa 66 % in die Länge und wird um etwa 44 % schmaler.

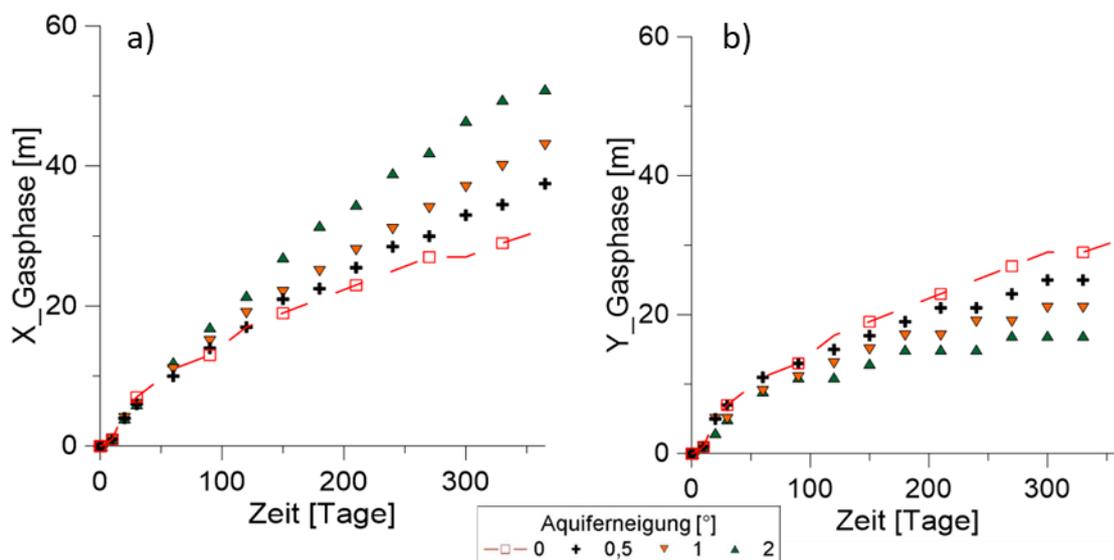


Abb. 4-13 X- (a) und Y-Erstreckung (b) des Gasphasenkörpers über die Zeit bei unterschiedlichen Neigungswinkeln des hangenden Grundwasserstauers

Die in den Szenarien gemessene maximale Gassättigung unterhalb des hangenden Stauers senkrecht über der Leckage nimmt mit zunehmender Aquiferneigung ab. Bei einer Neigung von 2° beträgt sie 15 % (Abb. 4-14). Dies ist auf die dichtegetriebene Ablenkung des gasförmigen CO_2 unterhalb des Stauers zurückzuführen, wodurch sich weniger Gas im Porenraum akkumuliert. Die Kräfte, die für die Überwindung des Kapillardrucks aufgebracht werden müssen, werden durch die Neigung verstärkt. Respektive: Weil es eine Neigung gibt, kann das Gas aufsteigen und wird nicht wie im Basismodell gezwungen, sich lateral auszubreiten. Der im vorliegenden Fall vorhandene Mehrphasenfluss determiniert ausschließlich die Größe des von der Gasphase beeinflussten Bereichs.

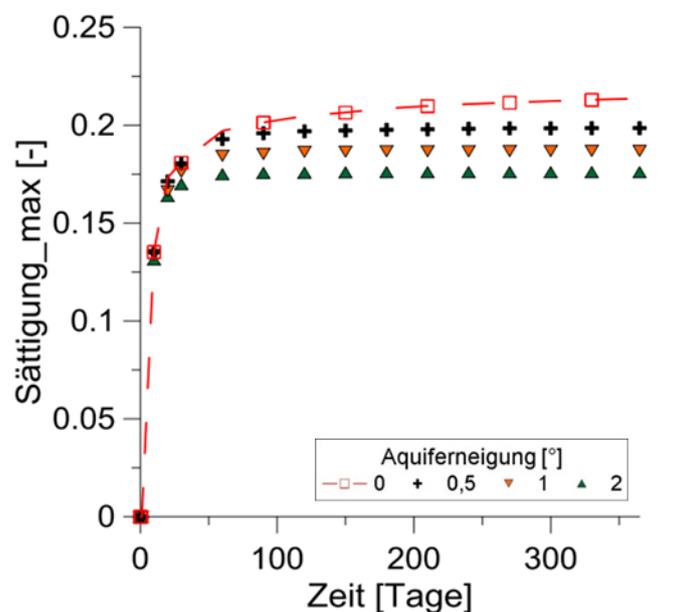


Abb.: 4-14: Entwicklung der maximal gemessenen Gassättigung senkrecht über der Leckage in Abhängigkeit des Neigungswinkels des hangenden Grundwasserstauers

4.4.3 Einfluss der Grundwasserströmung

Nachdem das gasförmige CO_2 in den Aquifer gelangt ist, beginnt es sich zu lösen. Im Vergleich zu den Szenarien ohne Grundwasserströmung wird in diesem Szenario das bereits im Wasser gelöste CO_2 mit dem Grundwasser stromabwärts transportiert. Bei den verwendeten Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten zeigt sich allerdings kein signifikanter Einfluss auf den Aufstieg der Gasphase bis unter den Stauer. Die Gasphase erreicht nach 10 Tagen die Aquiferoberkante und beginnt sich annähernd radial auszubreiten (Abb. 4-15).

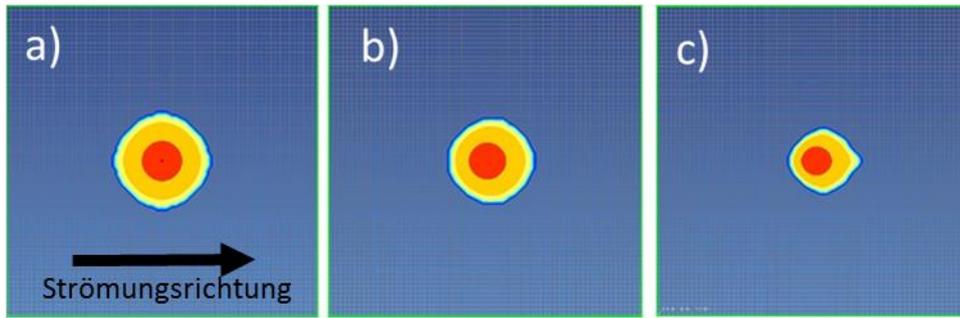


Abb. 4-15 Fläche des CO₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,0m/Tag (a), 0,03m/Tag (b) und 0,07m/Tag (c)

Je höher die Grundwasserströmung, desto mehr CO₂ wird im Wasser gelöst und desto kleiner wird der Gasphasenkörper. Bei der höchsten verwendeten Grundwasserströmung von 0,07 m/Tag erreicht der Phasenkörper nach einem Jahr Simulationszeit eine Fläche von etwa 340 m². Die Gasausbreitung ist mit 709 m 50 % kleiner als die Ausbreitung im Basismodells (Abb. 14-16 a; Abb. 14-17).

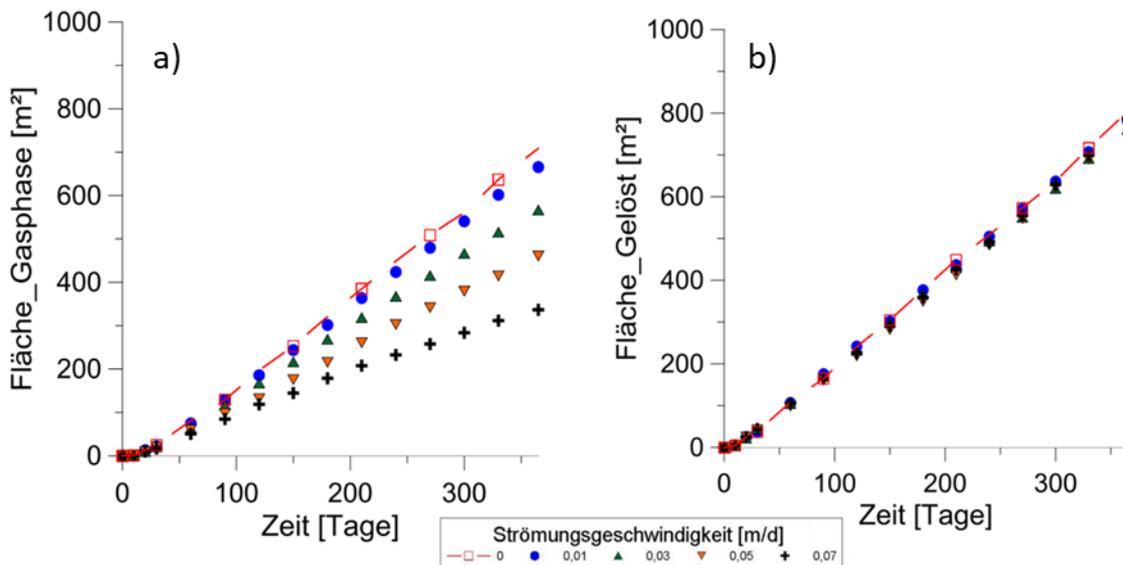


Abb. 4-16: Fläche des CO₂-Gasphasenkörpers (a) und der Fahne des CO₂gel (b) unter dem hangenden Grundwasserstauer nach einem Jahr, bei variierten Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten

Die Ausbreitung des im Wasser gelösten CO₂ nimmt dagegen mit der Zeit zu. Ein Einfluss der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung der Gasphase unter dem Stauer zeigt keine Signifikanz (Abb. 4-19). Das gelöste CO₂ wird mit dem Grundwasser stromabwärts transportiert und damit wird die Fahne gestreckt. Im Vergleich zum Basismodell wird in dem Szenario mit einer

Strömungsgeschwindigkeit von 0,07 m/s die CO₂ Fahne um 50 % länger und um 20 % schmaler (Abb. 4-19 und Abb. 4-20). Mit zunehmender Grundwasserströmungsgeschwindigkeit wird die CO₂ - Fahne länger. Es zeigt sich, dass sich die Konzentrationsverteilung des CO₂ innerhalb der Fahne ändert. Befindet sich Gas im Porenraum, wird dort die maximale Menge an CO₂ gelöst. Im Abstrom des Gasphasenkörpers sinkt die Konzentration durch Vermischung (Abb. 4-20c).

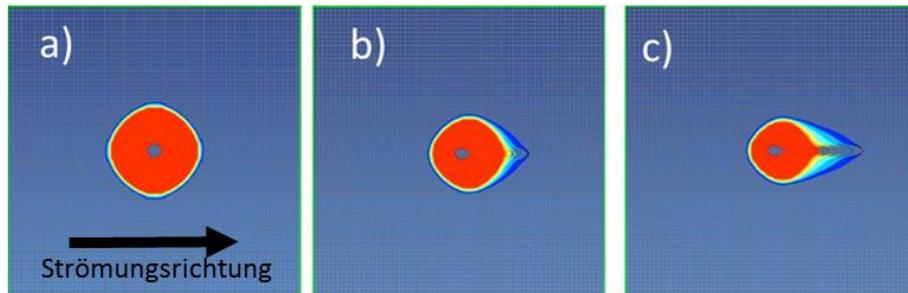


Abb. 4-17: CO₂gel. Fahne an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr Simulationszeit, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,0m/Tag (a), 0,05m/Tag (b), 0,07m/Tag (c)

4.4.4 Einfluss des Winkels zwischen Grundwasserströmungsrichtung und Aquiferneigung auf die Ausbreitung einer Gasphase unterhalb eines hangenden Grundwasserstauers

Im nächsten Schritt wird untersucht, inwiefern der Winkel zwischen der Grundwasserströmungsrichtung und der Aquiferneigung die Migration des Gasphasenkörpers beeinflussen. Dazu wird der Neigungswinkel von 1° und die Neigungsrichtung konstant gehalten, die Grundwasserströmungsrichtung und Geschwindigkeit variiert.

Sind Grundwasserströmung und Neigung gegeneinander gerichtet, migriert der Gasphasenkörper in Richtung der steilsten Neigung aufwärts. Die entgegengesetzte Grundwasserströmung bewirkt eine leichte Deformation der Front des Phasenkörpers (Abb. 4-18). Mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit wird der Gasphasenkörper kleiner. Das CO₂ wird gelöst.

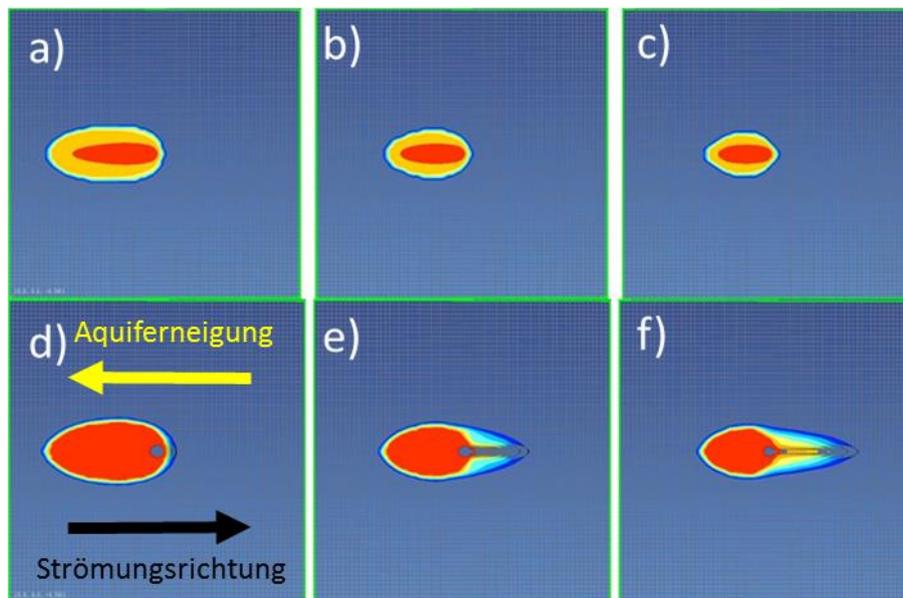


Abb. 4-18: Fläche des CO₂-Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (a), 0,05 m/Tag (b) und 0,07 m/Tag (c). Fläche der CO₂ Fahne an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr Simulationszeit, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (d), 0,05 m/Tag (e), 0,07 m/Tag (f)

Die Fahne des gelösten CO₂ hat bei den jeweiligen Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten die Breite des Gasphasenkörpers, ist aber dreimal länger. Der Auswirkungsbereich ergibt sich aus dem Mehrphasentransport in Neigungsrichtung und dem Transport des gelösten CO₂ mit der entgegengesetzten Grundwasserströmung.

Stehen Neigungsrichtung und Grundwasserströmung senkrecht zueinander, migriert das gasförmige CO₂ in Richtung der steilsten Neigung. Es wird an der vom Grundwasser angeströmten Seite in Strömungsrichtung deformiert (Abb. 4-19). Die senkrecht zur Längsseite des Gasphasenkörpers stehende Grundwasserströmung bewirkt dann entsprechend eine Verlängerung der angeströmte Fläche, damit erhöht sich die Gaslösung im Wasser. Der Gasphasenkörper verringert sich bei zunehmender Grundwasserströmung im Vergleich zu dem vorangegangenen Szenario um 25 % (Abb. 4-19 a bis d). Der Transport des gelösten CO₂ führt in diesem Fall zu einer Verbreiterung des Auswirkungsbereichs (Abb. 14-19 h). Am breitesten ist die Fahne des gelösten CO₂, in Neigungsrichtung auf der Höhe der Leckage, da hier als erstes Lösung stattgefunden hat und das gelöste CO₂ am weitesten transportiert wurde. Mit zunehmender Entfernung zur Leckage wird die CO_{2,gel}-Fahne schmaler.

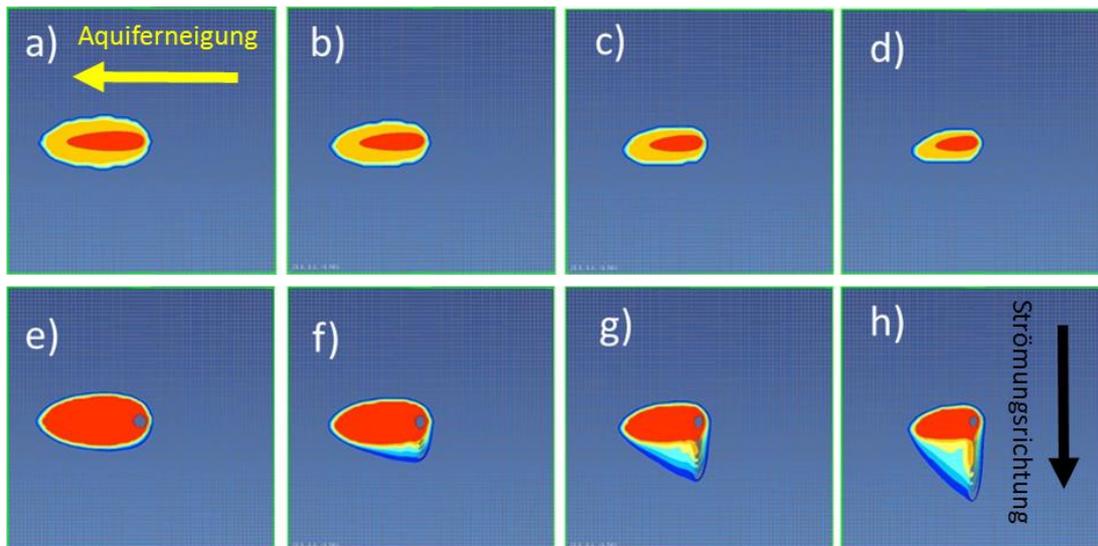


Abb. 4-19: Fläche des CO₂ Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (a), 0,03 m/Tag (b), 0,05 m/Tag (c) und 0,07 m/Tag (d). Ausdehnung der CO₂ Fahne an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (e), 0,03 m/Tag (f), 0,05 m/Tag (g) und 0,07 m/Tag (h)

Die Flächen des gelösten CO₂ nehmen mit zunehmender Strömungsgeschwindigkeit zu (Abb. 4-20, rechts). Dabei variieren die Flächen nach einem Jahr Simulationszeit zwischen 787 m² – bei einer Neigung von 1° und ohne Grundwasserströmung – und 902 m² – bei einer Neigung von 1° und einer Strömung von 0,07 m/Tag (Abb. 4-20, b). Der Impakt setzt sich wieder zusammen aus dem Bereich, in dem sich die Gasphase ausgebreitet hat und dem Bereich, in dem das gelöste CO₂ transportiert wird. Weil Neigung und Strömungsrichtung senkrecht zueinanderstehen, wächst der beeinflusste Raum über die Zeit nicht nur in die Länge, sondern auch in die Breite. Weiterhin kommt es zu einer räumlichen Separation des Intrusionskörpers: Erstens in den Bereich, in dem sich die Gasphase befindet, mit hohen Konzentrationen von gelöstem CO₂ im Wasser und gesteuert durch die Morphologie des Aquifers und zweitens in den Bereich im Abstrom des Gasphasenkörpers, der nur gelöstes CO₂ enthält und wo die CO₂ Konzentrationen durch Vermischung verdünnt werden.

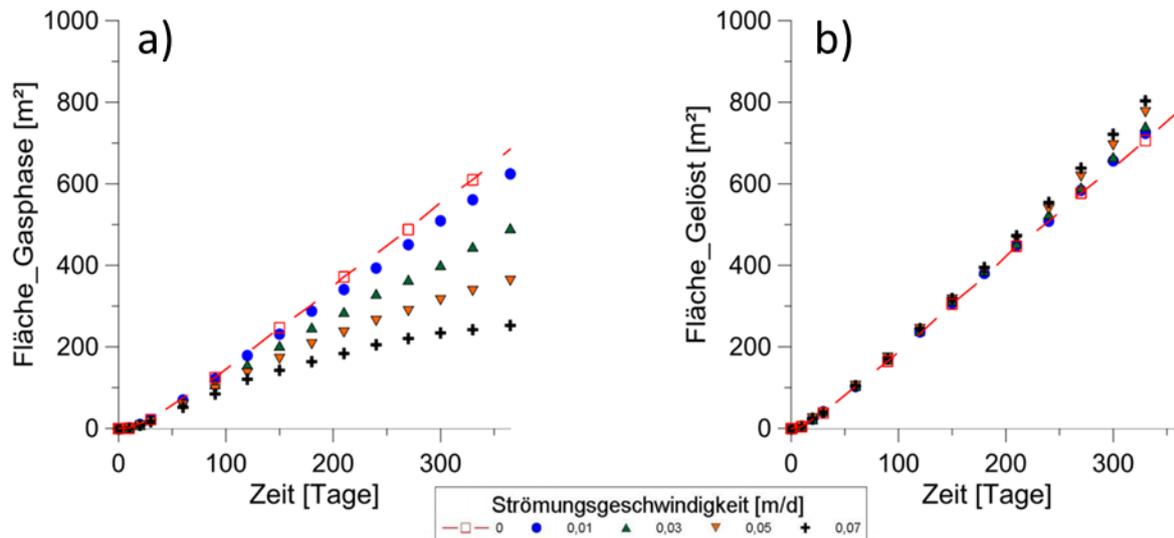


Abb. 4-20: Fläche des CO₂ Gasphasenkörpers (a) und der CO₂gel Fahne (b) unterhalb des hangenden Grundwasserstauers bei variierten Strömungsgeschwindigkeiten

Verlaufen die Grundwasserströmung und Aquiferneigung gleichgerichtet, zeigt sich im Vergleich zu den anderen Szenarien eine Vergrößerung des Gasphasenkörpers. Bei einer Grundwasserströmungsgeschwindigkeit von 0,07 m/Tag beträgt die Fläche etwa 400 m² (Abb. 4-21 und Abb. 4-22).

Da sich die Gasphase unterhalb des Stauers mit der Grundwasserströmung ausbreitet und so die Kontaktfläche zwischen CO₂ untersättigtem Wasser und der Gasphase kleiner wird, nimmt die CO₂-Lösung ab. Dies resultiert aus der längeren simultanen Fließzeit zwischen dem an CO₂ gesättigten Porenwasser und der CO₂-Gasphase.

Die Ausbreitung des gelösten CO₂ verringert sich bis zu einer Geschwindigkeit von 0.05 m/Tag. Die Flächen des gelösten CO₂ nehmen bis zu einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,05 m/Tag ab (Abb. 4-21). Bei einer Strömung von 0,07 m/Tag findet ein Flächenzuwachs von 22 m² gegenüber einer Strömung von 0,05 m/Tag statt. Ursachen für die Flächenabnahme des gelösten CO₂ bis zu einer Strömung von 0,05 m/Tag sind die gleichgerichtete, dichtegetriebene Migration der Gasphase und des Transportes des gelösten CO₂ mit der Strömungsrichtung. Der Gastransport verläuft schneller als der Transport des gelösten CO₂. Die Fahne des gelösten CO₂ wächst langsamer als die der Gasphase. Bei einer Grundwasserströmung von 0,07 m/Tag ist der Transport des gelösten CO₂ schneller als derjenige der Gasphase.

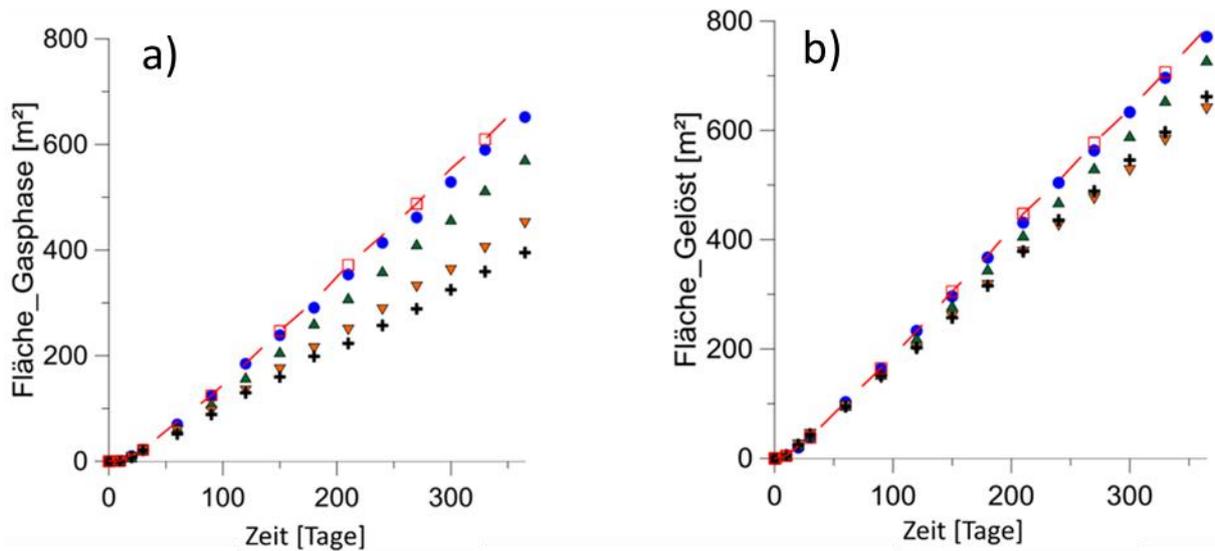


Abb. 4-21: Fläche des CO₂ Gasphasenkörpers (a) und der CO_{2gel} Fahne (b) unterhalb des hangenden Grundwasserstauers bei variierten Strömungsgeschwindigkeiten

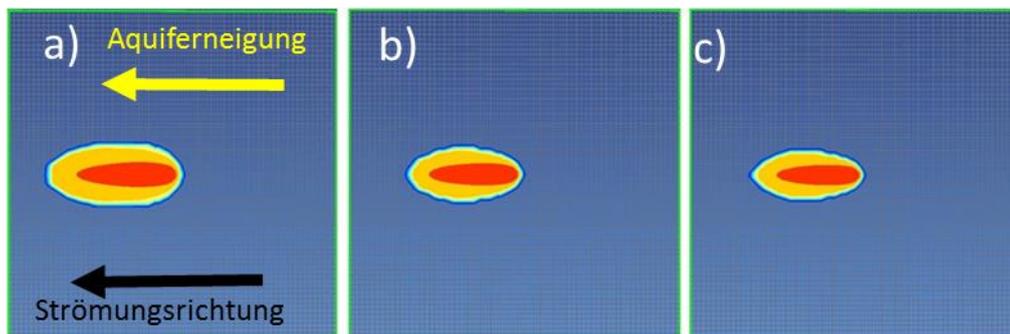


Abb. 4-22: Fläche des CO₂-Gasphasenkörpers an der Oberkante des Aquifers nach einem Jahr, bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag (a), 0,05 m/Tag (b) und 0,07 m/Tag (c) und gleichgerichteter Aquiferneigung

Sind die Bewegungsrichtungen der Gasphase und des Grundwassertransportes aufgrund der Aquiferneigung und der Strömungsrichtung senkrecht zueinander, ist der vom Grundwasser angeströmte Bereich des Gasphasenkörpers am größten. In Abhängigkeit der Transportgeschwindigkeit, erreicht auch die CO_{2gel}-Fahne ihr größtes Ausmaß. Der kleinste Auswirkungsraum entsteht, wenn die Transportrichtung des Gases und der Grundwassertransport einander entgegengerichtet sind. Die entgegengesetzte Strömungsrichtung bewirkt, dass der Gasphasenkörper aufgestaut wird und sich um die entsprechende Fläche verkleinert.

4.4.5 Einfluss von Grundwasserströmung zwischen 0,1 m/Tag und 0,5 m/Tag auf die Ausbreitung einer Gasphase

Die folgenden Szenarien betrachten Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten von 0,1 m/Tag bis 0,5 m/Tag. Dabei zeigt sich, dass der Gasphasenkörper durch die höheren Grundwasserströmungsgeschwindigkeiten stärker deformiert und in Strömungsrichtung in die Länge gestreckt wird, während seine Ausbreitung quer zur Strömung abnimmt (Abb. 4-23). Je stärker die Grundwasserströmung, desto größer ist auch die Deformation. Bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,1 m/Tag erstreckt sich der Phasenkörper etwa 25 m entgegen der Strömungsrichtung und etwa 75 m in Strömungsrichtung. Quer zur Strömungsrichtung beträgt die Erstreckung 40 m. Hingegen breitet sich der Gasphasenkörper bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,5 m/Tag nicht mehr gegen die Strömungsrichtung aus und erreicht eine Länge von maximal 40 m in Strömungsrichtung. Quer zur Strömung beträgt die Ausdehnung 10 m.

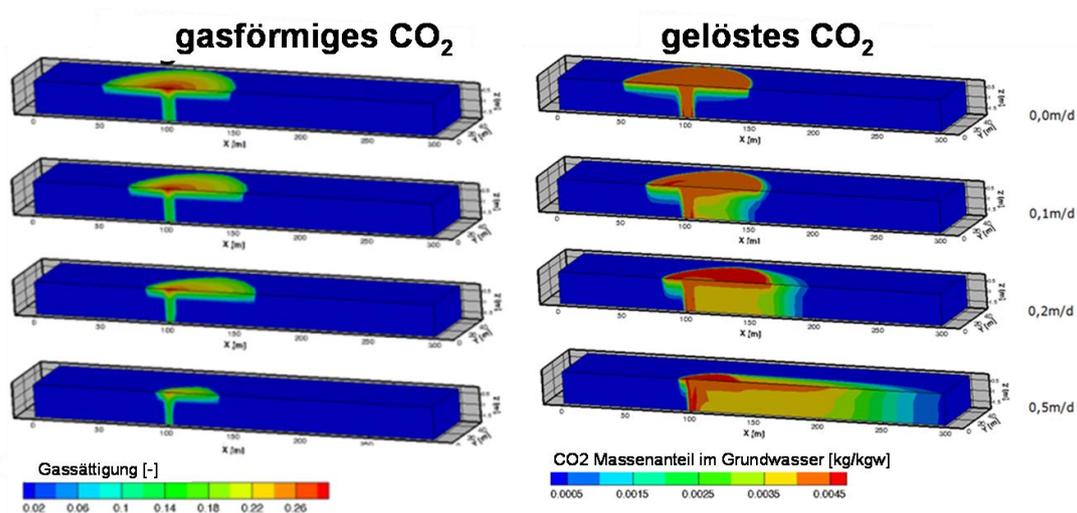


Abb. 4-23: Änderung der Ausbreitung der CO₂-Gasphasenkörper (links) und der Fahne des gelösten CO₂ mit Änderung der Grundwasserströmung (nach Schäfer et al., 2013)

Das gelöste CO₂ wird mit der Grundwasserströmung stromabwärts transportiert (Abb. 4-23). Mit zunehmender Strömung wird die Fahne des gelösten CO₂ schmäler und länger. Die Erstreckung der gelösten CO₂-Phase entgegen und quer zur Strömungsrichtung entspricht wieder annähernd der Erstreckung des Gaskörpers (Abb. 4-23). Nach einem Jahr beträgt die Fahnenlänge des gelösten CO₂ unterhalb des Grundwasserstauers bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,1 m/Tag 60 m und bei 0,5 m/Tag von 200 m. Ein Vergleich der Flächen unterhalb des Grundwasserstauers, die das gelöste CO₂ und das gasförmige CO₂ einnehmen, zeigt, eine Verkleinerung der durch das gasförmige CO₂ eingenommenen Fläche mit zunehmender Grundwasserströmung. Die Fläche des gelösten CO₂ wird hingegen größer (Abb. 4-23).

Nimmt die Strömungsgeschwindigkeit in einem Grundwasserleiter zu, verlangsamt sich der Flächenzuwachs des CO₂-Gasphasenkörpers, im Gegensatz dazu nimmt die Fläche der gelösten CO₂-Fahne schneller zu (Abb. 4-23). Bei der höchsten angenommenen Strömungsgeschwindigkeit (0,5 m/Tag) nimmt die Fläche des gasförmigen CO₂ zunächst bis zu einer Simulationszeit von etwa 200 Tagen zu, danach bleibt die Fläche mit 200 m² konstant. Es gelangt somit ab 200 Tagen Leckagezeit die gleiche CO₂-Gasmasse in das Aquifersystem, die auch im Wasser gelöst wird.

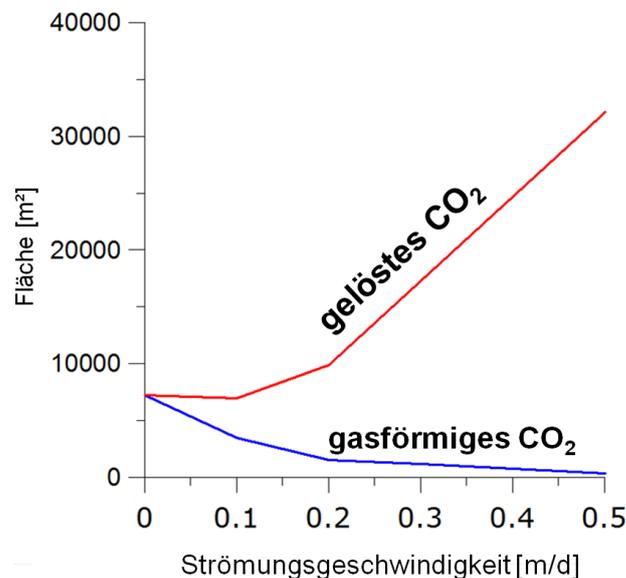


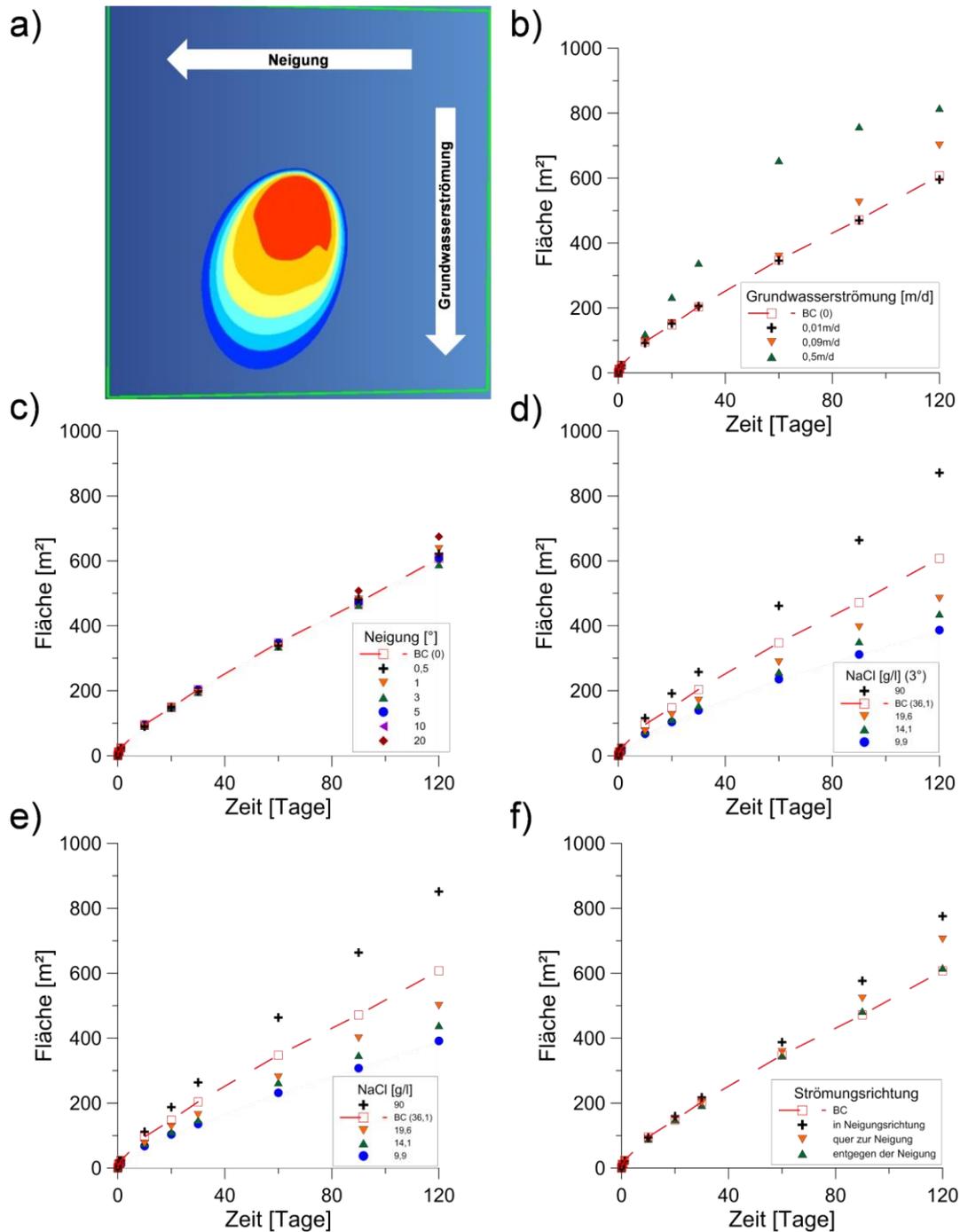
Abb. 4-24: Veränderung der Fläche des gasförmigen CO₂-Gasphasenkörpers und der Fahne des gelösten CO₂ unterhalb einer Deckschicht in einem gespannten Aquifer nach einem Jahr Leckagezeit in Abhängigkeit von der Grundwasserströmung (nach Schäfer et al., 2013)

4.4.6 Einfluss der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung einer Salzwasserfahne

Die Ergebnisse der Simulationen zur Salzwassermigration werden nach einer Simulationszeit von 120 Tagen dargestellt.

Der Salzwasserkörper des 3D Basismodells ohne Grundwasserströmung nimmt nach 120 Tagen eine Fläche von 608 m² ein (Abb. 4-24). Bei einer Strömungsgeschwindigkeit vom 0,5 m/Tag vergrößert sich die Fläche auf 816 m². Die maximale Konzentration von gelöstem NaCl beträgt im Modellgebiet 35,2 g/l (Basismodell NaCl = 35,7 g/l). Da die Fläche des Salz-

wasserkörpers trotz konstanter Maximalkonzentration in der Nähe der Leckage zunimmt, nehmen die Konzentrationen innerhalb der Salzwasserfahne ab, insbesondere aufgrund erhöhter Vermischung an den Rändern (vgl. Abb. 4-25a).



4.4.7 Variation der Aquiferneigung und Variation der Salinität des Intrusionswassers bei einer Aquiferneigung von 3°

Bei fehlender Grundwasserströmung migriert der Salzwasserkörper aufgrund der höheren Dichte in Richtung des steilsten Gradienten der Aquifersohle abwärts. Bei kleinen Neigungswinkeln bis zu 3° der Aquifersohle ändert sich die Fläche der Salzwasserfahne kaum, sie beträgt nach 120 Tagen etwa 610 m² (Abb. 4-25c). Erst bei höheren Neigungswinkeln beginnt sich der Salzwasserkörper in Neigungsrichtung zu deformieren und zu vergrößern. Bei einer Neigung von 20° beträgt die Fläche nach 120 Tagen Simulationszeit 675 m². Die Maximalkonzentration von NaCl bleibt bei allen Neigungen mit der Konzentration des intrudierenden Salzwasser (35,73 g/l) konstant. Allerdings verändert sich die Konzentrationsverteilung innerhalb des Intrusionskörpers.

Bei gleichbleibender Aquiferneigung (3°) und variiertes Salzkonzentration beträgt die Fläche der Salzwasserfahne bei einer NaCl-Konzentration von 90 g/l und einer Simulationszeit von 120 Tagen 871 m². Bei einer Verdünnung um das 10-fache (9,9 g/l) verkleinert sich die vom Salzwasser beeinflusste Fläche auf 387 m² (Abb. 4-24d).

4.4.8 Einfluss der Kombination von Grundwasserströmungsgeschwindigkeit und Neigungsrichtung des Aquifers auf den Salzwasserkörper

Fließt das Grundwasser in Neigungsrichtung der Aquifersohle, bildet sich bei einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,5 m/Tag und bei 3° Neigungswinkel des Aquifers nach 120 Tagen Simulationszeit ein Salzwasserkörper mit einer Fläche von 776 m² (Abb. 4-24f). Die Fahne ist 33,5 m lang und 24 m breit.

Sind Dichteströmung und Grundwassertransport entgegengesetzt gerichtet, wird der Salzwasserkörper im Vergleich zum Basismodell mit einer Fläche von 617 m² nur etwa 7 m² kleiner. Der Grundwassertransport ist der dominierende Prozess und mit fortlaufender Leckagezeit vergrößert sich der Salzwasserkörper durch Transport des Salzwassers mit der Grundwasserströmung.

Stehen das Grundwasserströmungsfeld und die Neigung der Aquiferbasis senkrecht zueinander, wird der Intrusionskörper um 70° von der Neigungsrichtung in Richtung des Grundwassertransportes abgelenkt (Abb. 4-24-a). Die Fläche beträgt nach 120 Simulationstagen 704 m², die Länge 30 m und die Breite 24 m. Die Grundwasserströmung ist der dominierende Transportprozess.

Die lokale Sensitivitätsanalyse zeigt, dass die Ausbreitung des Salzwasserkörpers vor allem auf die hydraulischen Parameter Porosität und Permeabilität sensitiv reagiert. Die effektive Porosität zeigt den größten Einfluss auf das Ausbreitungsverhalten. Die Ausbreitung reagiert nicht auf Veränderungen von Druck und Temperatur. Bei der Erkundung eines Standorts sollte daher das Hauptaugenmerk auf der Bestimmung der hydraulischen Aquiferparameter Permeabilität – respektive k_f -Wert – und Porosität liegen. Allerdings ist das Erheben entsprechender Parameter wie etwa der effektiven Porosität mittels Tracertest insbesondere für tiefer gelegene Schichten recht aufwendig und damit kostenintensiv.

Die Ausbreitung des Salzwassers reagiert ebenfalls sensitiv auf die Intrusionsrate, diese kann jedoch zurzeit nicht prognostiziert werden. Zudem fehlen Erfahrungswerte – etwa aus Naturanalogie. Bei Prognosen zum Einfluss einer Salzwasserintrusion auf oberflächennahe Grundwasserleiter an realen Standorten empfiehlt sich daher eine Unsicherheitsanalyse.

4.5 Grundwasserströmungsmodell „CLEAN-Standort“

Zur Wiedergabe der im Gelände gemessenen Grundwasserstände wurde der Hauptgrundwasserleiter L4 in drei Durchlässigkeitszonen untergliedert (Abb. 4-26). Im nordwestlichen Teil des Modellgebietes wurde ein Bereich mit einer höheren Durchlässigkeit von $k_f = 7 \times 10^{-4}$ m/s und im Südwesten ein Bereich mit einer geringeren Durchlässigkeit von $k_f = 1 \times 10^{-5}$ m/s kalibriert. Im übrigen Modellgebiet beträgt der k_f -Wert $k_f = 1 \times 10^{-4}$ m/s.

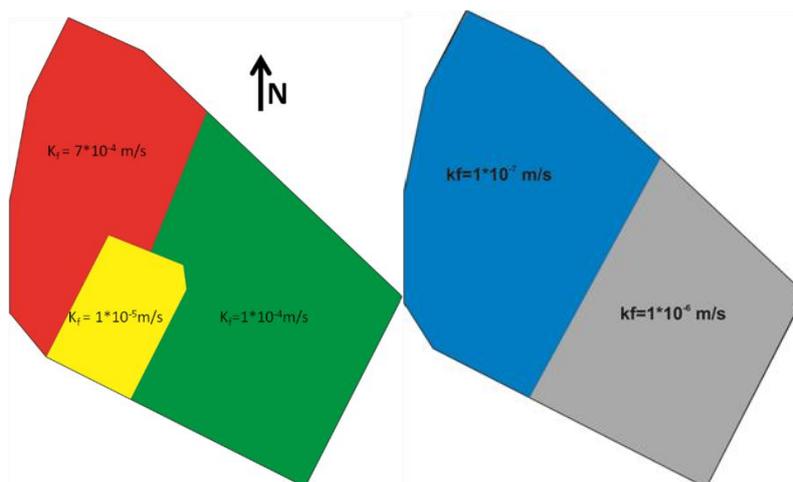


Abb. 4-26: Verteilung der kalibrierten k_f -Werte im Grundwasserleiter L4 (links) und im Grundwasserstauer L2 (rechts)

Für den Grundwasserstauer L2 ergibt sich eine von Nordosten nach Südwesten verlaufende Zweiteilung in der Mitte des Modellgebietes (Abb. 4-26, links). Im Westen beträgt der kalibrierte k_f -Wert 3×10^{-7} m/s und im Osten $k_f = 1 \times 10^{-6}$ m/s. Der Grundwasserleiter L3 (nicht dargestellt) ist homogen, der k_f -Wert beträgt 1×10^{-4} m/s. Im Grundwasserstauer ergibt sich ebenfalls eine homogene k_f -Wertverteilung von 1×10^{-6} m/s. Um die Wasserstände im Grundwasserleiter L4, in dem die Grundwassermessstellen am Standort verfiltert sind, wiedergeben zu können, mussten alle vier Modellschichten kalibriert werden. Dargestellt wird entsprechend nur der Grundwassergleichenplan des Grundwasserleiters L4. Aus den ermittelten Annahmen des Modells ergibt sich im Vergleich zwischen den am Standort gemessenen Wasserständen und den simulierten Wasserständen, bis auf einen Ausreißer, eine maximale Abweichung von 1 m (Abb. 4-27). Vor dem Hintergrund der geringen Datendichte und in Anbetracht der Fragestellung ist dies ein hinreichend gutes Ergebnis.

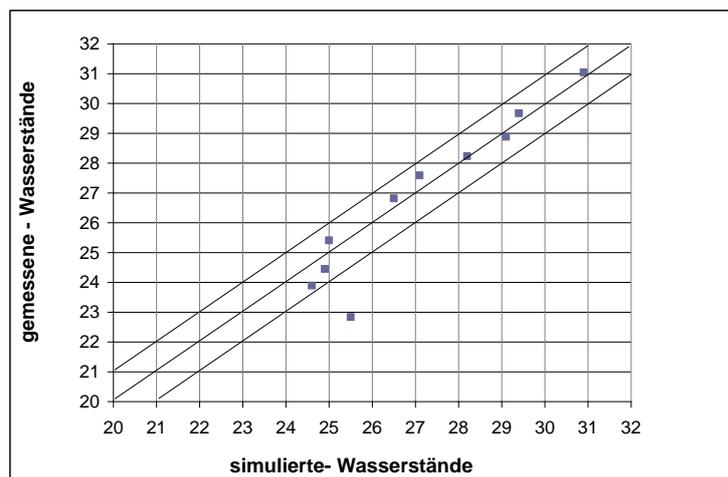


Abb. 4-27: Vergleich zwischen den gemessenen Wasserständen und den simulierten Wasserständen im Grundwasserleiter L4

Es ergibt sich das in Abb. 4-28 dargestellte Strömungsfeld, mit einer maximalen Strömungsgeschwindigkeit von 0,63 m/Tag und einer minimalen Strömungsgeschwindigkeit von 0,01 m/Tag. Die mittlere Strömungsgeschwindigkeit beträgt etwa 0,3 m/Tag im östlichen Teil des Modellgebiets. Im Norden, nahe der Jeetze, liegen geringere Strömungsgeschwindigkeiten vor im Vergleich zu denen im Südosten des Modellgebiets. Die Bahnlinien verlaufen im östlichen Teil des Modellgebiets annähernd parallel und knicken im Südwesten nach Süden und im Nordwesten nach Norden ab, da dort das Grundwasser in die Jeetze strömt.

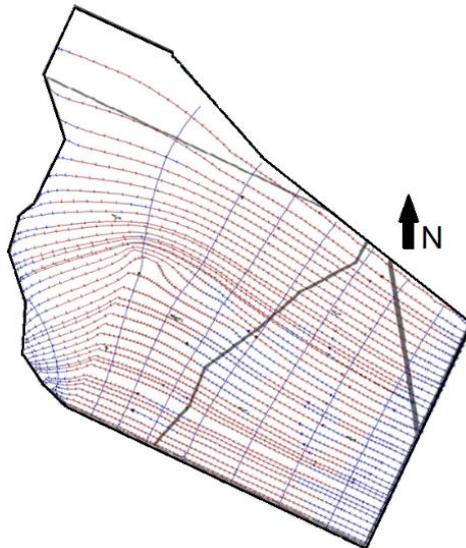


Abb. 4-28: Kalibriertes Strömungsfeld mit Isohypsen und Bahnlinien des CLEAN-Untersuchungsgebietes im Grundwasserleiter L4

4.6 CLEAN-Standortszenarien zur Ausbreitung von gasförmigen und gelösten CO₂

4.6.1 Gasausbreitung an unterschiedlichen Leckagepositionen

Ziel dieser Szenarienreihe ist die Untersuchung des Ausbreitungsverhaltens unterhalb des hangenden Grundwasserstauers unter dem Einfluss der Position der Leckage zum Relief und der Grundwasserströmung. Zu diesem Zweck wurden zunächst CO₂-Leckagen an vier unterschiedlichen Positionen gewählt (A, B, C, D und F; vgl. Kap. 3).

Nach einer Leckagezeit von 3 Jahren haben die CO₂-Gasphasenkörper eine laterale Ausbreitung unterhalb des hangenden Grundwasserstauers von 176 m² (Leckageszenario A), 207 m² (Leckageszenario B), 250 m² (Leckageszenario C) und 400 m² (Leckageszenario D) (Abb. 4-29a). Die Gasphasenkörper passen sich in ihrer Form der Topographie des hangenden Stauers an. Nach 10 Jahren Leckagezeit haben sich die CO₂-Gasphasenkörper erwartungsgemäß vergrößert. Der Gasphasenkörper des Leckageszenarios A hat eine Fläche von 200 m², im Leckageszenario B ist die Fläche 210 m², im Leckageszenario C ist sie 723 m², und im Leckageszenario D hat der Gasphasenkörper sich auf 2724 m² ausgedehnt (Abb. 4-28b). Die Phasenkörper der Szenarien A, B und C breiten sich unterhalb der Deckschicht aus und werden in Abhängigkeit des Neigungswinkels der Deckschicht in die Länge gestreckt (Abb. 4-29). Die Gasphase im Szenario A migriert in Richtung NW aus dem Modellgebiet heraus. Aufgrund des Einflusses der Randbedingung ist damit keine Veränderung des Gasphasenkörpers über die Zeit zu erkennen.

Im Szenario B migriert das gasförmige CO₂ in nördliche Richtung. Im Vergleich zu der Gasphase im Szenario C, die in NW-Richtung migriert, ist der Phasenkörper im Szenario B kürzer und breiter wegen eines geringeren Neigungswinkels des hangenden Stauers. Die maximale Gassättigung der CO₂-Gasphasenkörper beträgt 30 % an den Leckagen A, B und C. Der Gasphasenkörper im Szenario D migriert in die Antiklinalstruktur des Standortes und akkumuliert sich dort. Die Gasausbreitung bewirkt, dass im Vergleich zu den Leckagen der Szenarien A, B, und C der Phasenkörper größer ist. Die Antiklinalstruktur hat ihren höchsten Punkt bei 20 mNN und liegt damit im Mittel 10 m höher als die Oberkanten der Grundwasserstauer in den betrachteten Bereichen der Leckageszenarien A, B und C. Das Gas akkumuliert sich in der Antiklinalstruktur, die Gassättigung im Porenraum steigt bis auf 77 % und der Druck erhöht sich. Der Partialdruck des gelösten CO₂ erreicht in den Szenarien A, B und C 2.5×10^5 Pa. Im Szenario D liegt er bei $1,3 \times 10^5$ Pa (Abb. 4-29c). Wie bereits anhand der radialsymmetrischen Szenarien gezeigt ist auch hier zu erkennen, dass mit zunehmender Tiefe mehr CO₂ im Wasser gelöst wird.

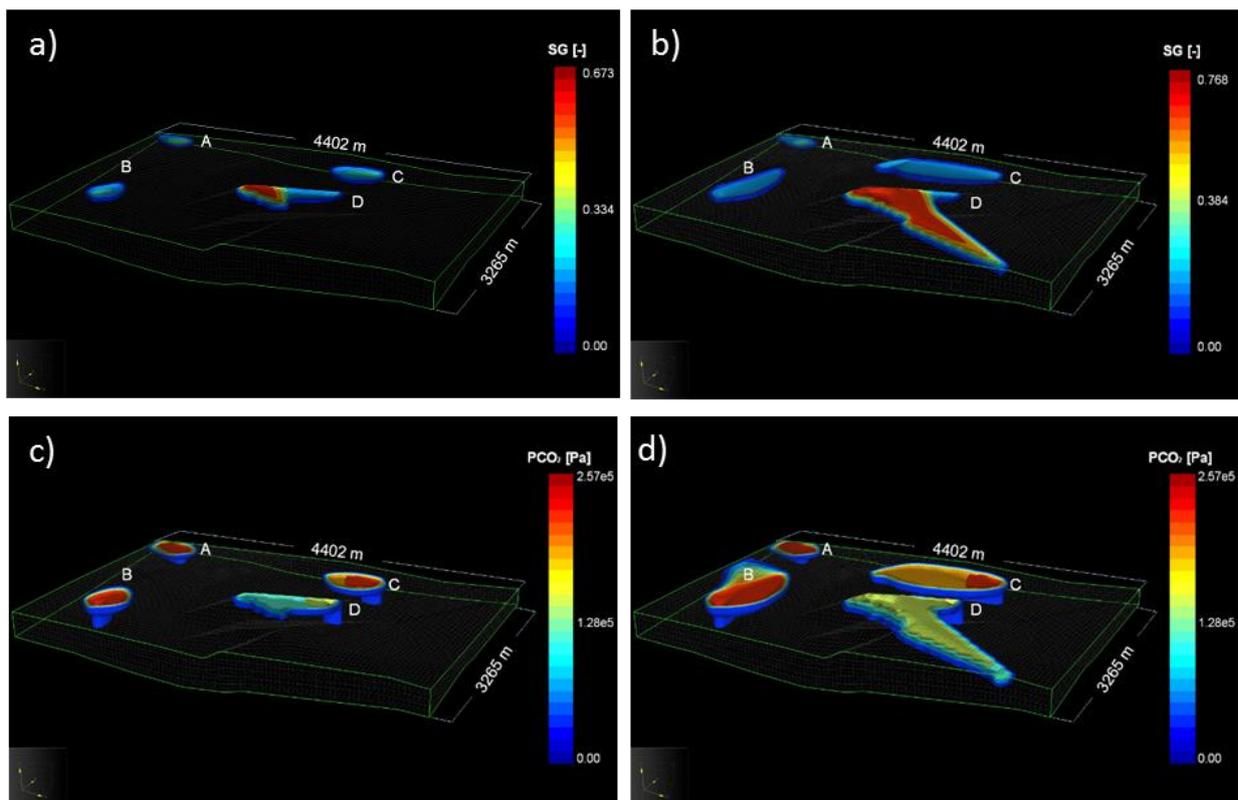


Abb. 4-29: a) Verteilung des gasförmigen CO₂ nach einer Leckagezeit von 3 Jahren und b) nach 10 Jahren. c) Partialdrücke des gelösten CO₂ nach 3 Jahren und d) nach 10 Jahren (unten rechts) Leckagezeit. Die Leckagerate beträgt in allen Simulationen $1,16 \times 10^{-2}$ kg/s, 15-fach überhöht (nach Wiegers et al., 2012)

In den tiefer gelegenen Bereichen des Aquifers sind die Gassättigungen niedriger und die Konzentrationen des gelösten CO₂ höher; in höher gelegenen Bereichen verhält es sich umgekehrt. Die Flächen des entstehenden Gasphasenkörpers unterhalb eines Grundwasserstauers wird die Ausbreitung vom Relief des hangenden Stauers beeinflusst.

4.6.2 Einfluss der Morphologie des hangenden Grundwasserleiters und der Grundwasserströmung auf die Ausbreitung von gelöstem und gasförmigem CO₂ am Standort CLEAN

Im Fall des Szenarios F migriert das Gas von der Leckage ausgehend in die Antiklinalstruktur und akkumuliert sich dort (Abb. 4-30). Nach einem Jahr Simulationszeit hat sich eine Gasphase mit einer Fläche von etwa 0,3 m² gebildet (Abb. 4-29). Trotz der Grundwasserströmung breitet sich der Gasphasenkörper dem Relief des Grundwasserstauers folgend in der Antiklinalstruktur aus. Die Grundwasserströmung hat in diesem Szenario keinen Einfluss auf die Form des Gasphasenkörpers. Dies liegt an der hohen Leckagerate im Verhältnis zur geringen Grundwasserströmung.

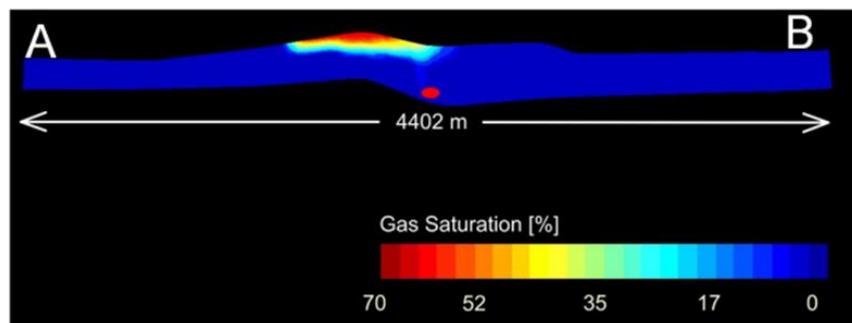


Abb. 4-30: Position der CO₂-Gasleckage und der Antiklinalstruktur im Längsprofil parallel zur Grundwasserströmung durch das CLEAN-Modellgebiet (Wieggers et al., 2012)

Der Abtransport des gelösten CO₂ mit der Grundwasserströmung führt dazu, dass kontinuierlich CO₂ aus dem Gasphasenkörper nachgelöst werden kann. Im Bereich des Gasphasenkörpers und in seinem Abstrom entsteht eine Fahne von gelöstem CO₂, die eine Fläche von etwa 0,45m² einnimmt. Sie ist 0,15 km² größer als die Fläche des Gasphasenkörpers unter dem Stauer. Da sich der Gasphasenkörper an der Aquiferoberkante ausbreitet, ist auch das gelöste CO₂ im oberen Bereich des Aquifers anzutreffen. Dort wo sich der Aufstiegskanal des Gasphasenkörpers befindet, bildet sich in seinem Abstrom eine Fahne, die der Breite des Aufstiegskanals entspricht.

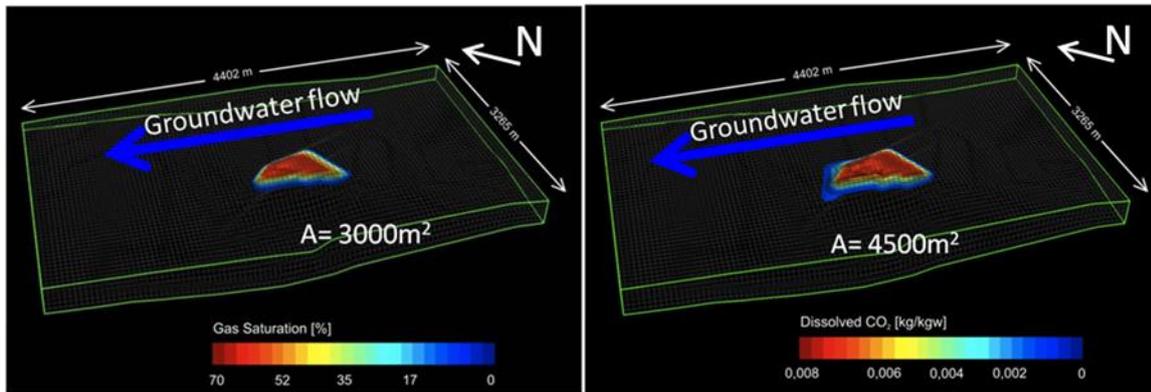


Abb. 4-31: Ausbreitung von gasförmigen (links) und gelösten (rechts) CO₂ im CLEAN-Modellgebiet (Wieggers et al., 2012)

4.7 Ausbreitung einer Salzwasserleckage am Standort CLEAN

4.7.1 Leckage aus den unteren Braunkohlesanden

Salzwasser aus einem Grundwasserleiter der unteren Braunkohlesande mit einer Leckagerate von $5,03 \times 10^{-7}$ kg/s breitet sich am simulierten Standort nach einer Leckagezeit von einem Jahr über eine Fläche von $0,07 \text{ km}^2$ aus. Nach 3 Jahren Simulationszeit beträgt die Fläche $0,2 \text{ km}^2$. Nach 5 Jahren Simulationszeit beträgt die Fläche $0,4 \text{ km}^2$. Die Breite der Salzwasserfahne bleibt über die Zeit mit 263 m unverändert (Abb. 4-32a). Die Fahne wächst ausschließlich in die Länge (Abb. 4-32b).

Die Salzwasserkonzentrationen über die Tiefe zeigt ein generelles Zunehmen der Konzentration an der Aquifersohle (Abb. 4-32b). Dies resultiert zum einen aus der Tatsache, dass sich die Leckage an der Sohle des Aquifers befindet und ein vertikaler Transport nach oben durch Diffusion und Dispersion nur eine untergeordnete Rolle spielt. Zum anderen schichtet sich das etwas dichtere Salzwasser unter dem Süßwasser ein.

Am Beobachtungsbrunnen B1, 411 m im Abstrom der Leckage, beträgt die NaCl-Konzentration an der Basis des Aquifers nach einem Jahr Leckagezeit $0,24 \text{ g/l}$ (Abb. 4-32b). An der Oberkante des Aquifers beträgt sie $0,001 \text{ g/l}$. Eine Beprobung des Aquifers über einen voll verfilterten Brunnen würde aufgrund der Vermischung einen Messwert von $0,08 \text{ g/l}$ ergeben, wodurch die Maximalkonzentration unterschätzt würde. Nach drei Jahren Simulationszeit hat die NaCl-Konzentration in der Mischwasserprobe die gewählte Grenzkonzentration von $0,25 \text{ g/l}$ mit einer Konzentration von $0,71 \text{ g/l}$ überschritten. In den oberen drei Metern des Aquifers wird die

Grenzkonzentration nicht überschritten, an der Basis des Aquifers beträgt die Maximalkonzentration des NaCl dagegen 2 g/l. Nach fünf Jahren Simulationszeit liegt die NaCl-Konzentration in der Mischwasserprobe bei 1,1 g/l. Die Salzkonzentrationen liegen bis zu einer Tiefe von -6 mNN, unterhalb von 0,25 g/l. An der Basis des Aquifers beträgt die Konzentration 3,5 g/l.

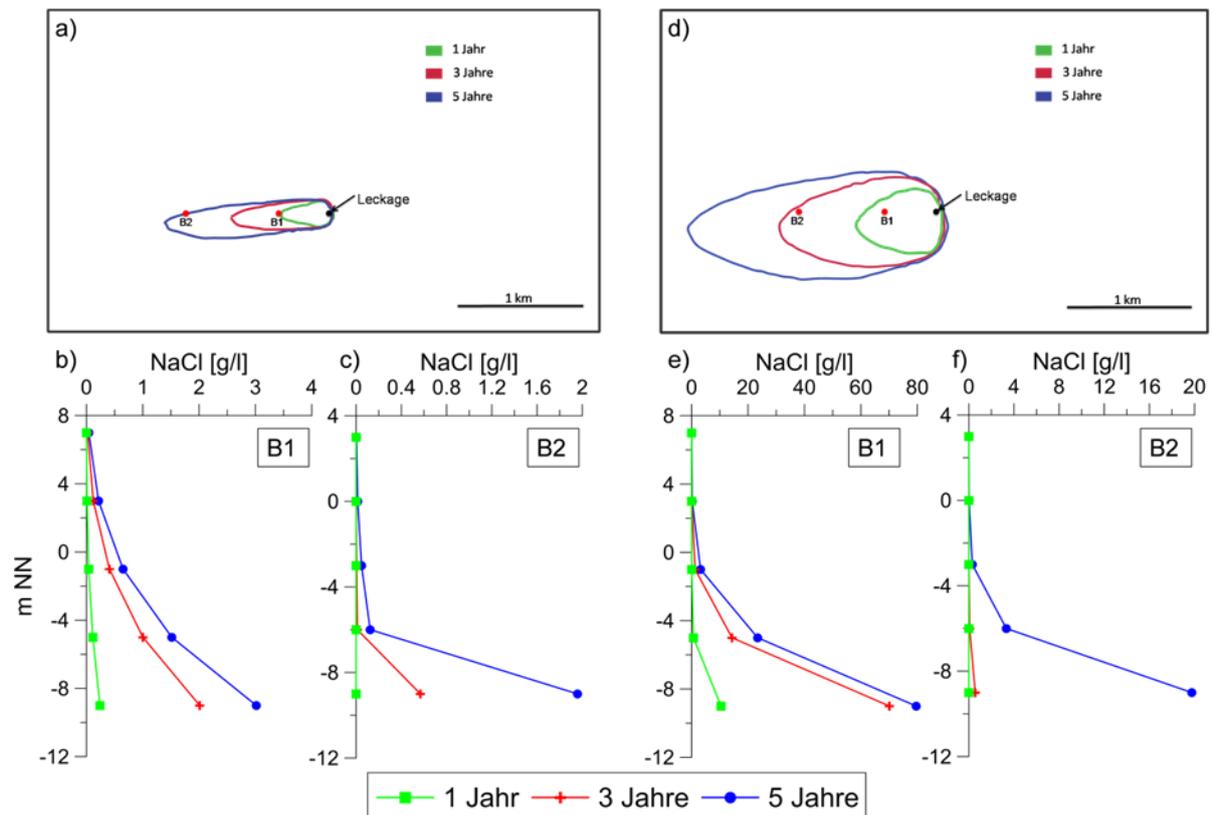


Abb. 4-32: Draufsicht auf das Modellgebiet mit den Isochronen der Konzentration vom 0,25 g/l NaCl für die Intrusion des Wassers aus dem Braunkohlesandaquifer a) und dem Wasser aus der Bundsandsteinformation d). Tiefenprofile an den Beobachtungsbrunnen Braunkohlesand B1 und B2 (b) und c)), sowie an den Beobachtungsbrunnen Bundsandstein B1 und B2 (e) und f)) (Wiegiers & Schäfer, 2015)

Den 1190 m im Abstrom der Leckage gelegenen Beobachtungsbrunnen B2 hat das Signal der Salzwasserintrusion nach einem Jahr Leckagezeit noch nicht erreicht (Abb. 4-32a). Die Mischwasserprobe hat nach drei Jahren Leckagezeit eine NaCl-Konzentration von 0,1 g/l. Werden Punktmessungen über die Tiefe vorgenommen, zeigt nur eine Probe aus der untersten Schicht bei -9 mNN ein Überschreiten der Grenzkonzentration von 0,6 g/l.

4.7.2 Leckage aus dem unteren Buntsandstein

Das mit 283,34 g/l deutlich salzhaltigere Wasser aus der Buntsandsteinformation intrudiert ebenfalls mit einer Leckagerate von $5,03 \times 10^{-7}$ kg/s in den oberflächennahen Modellaquifer. Nach einem Jahr Simulationszeit nimmt die Fläche, in der die NaCl-Grenzkonzentration von

0,25 g/l überschritten ist, 0,3 km² ein (Abb. 4-32d). Wie bereits bei den Ergebnissen zu den Braunkohlesandwässern wächst die Fläche mit der Zeit: nach einem Jahr = 1 km²; nach 5 Jahren = 1,73 km². Der dominierende Transportprozess ist auch bei den höheren Salinitäten des Bundsandsteinwassers der Grundwassertransport. Allerdings zeigt sich im Gegensatz zu den Szenarien mit den Braunkohlesandwässern, dass die Salzwasserfahne aufgrund ihrer höheren Salinität über die Zeit auch in ihrer Breite zunimmt. Daraus ergibt sich, dass mit höheren Salzkonzentrationen die Dichteströmung das Ausbreitungsverhalten vermehrt beeinflusst.

Nach einem Jahr Leckagezeit wird am Messpunkt B1 bei einer Beprobung über einen voll verfilterten Brunnen ein Mischsignal mit einer Konzentration von 2,2 g/l erreicht (Abb. 4-32e). Die Konzentration steigt bei einer Simulationszeit von fünf Jahren auf 21,2 g/l an. Bei der Verwendung eines Multilevelpegels wird der Grenzwert in den beiden obersten Schichten des Modells auch nach 5 Jahren Simulationszeit nicht überschritten. Erst ab einer Tiefe von -1 mNN steigen die Konzentrationen nach 3 Jahren Leckagezeit auf über 0,25 g/l an. Der Beobachtungsbrunnen B2, 1190 m von der Leckage entfernt, wird nach einem Jahr Simulationszeit noch nicht von der Salzwasserfahne erreicht (Abb. 4-32f). Nach 3 Jahren Simulationszeit zeigt das Signal der Mischwasserprobe eine Konzentration von 0,12 g/l. In einer Tiefe von -9 mNN beträgt die NaCl-Konzentration jedoch bereits 0,568 g/l.

Nach fünf Jahren Simulationszeit kann ab einer Tiefe von -9 mNN eine Erhöhung der Salzkonzentration von mehr als 2,5 g/l für Natrium und Chlorid gemessen werden. Die Maximalkonzentration beträgt an der Basis des Aquifers 19,7 g/l. Die in der Mischwasserprobe gemessene Konzentration beträgt 4,6 g/l.

4.8 Gasausbreitung in realistischen geologischen Strukturen

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Szenarien zur Ausbreitung des Gases Luft* am virtuellen Elmshorn-Standort beschrieben. Hier wird die Ausbreitung des Gases unter dem Einfluss geologischer Strukturen, die am Standort anzutreffen sind, untersucht. Anhand der Ergebnisse der Leckageszenarios 2 und 8 wird exemplarisch ein potentieller Migrationspfad und die zeitliche Ausbreitung des Gases beschrieben (Abb. 4-33 und 4-34). Dargestellt werden die Umhüllenden der Gasphase. Die dafür gewählte Sättigungsgrenze für das Gas beträgt 5 %.

4.8.1 Leckageszenario 2

Luft* dringt über die Leckage an der Basis der unteren Braunkohlesande ein und nach 10 Tagen Leckagezeit bildet sich an der Basis der unteren Braunkohlesande eine erste Gasphase (Abb. 4-33 a).

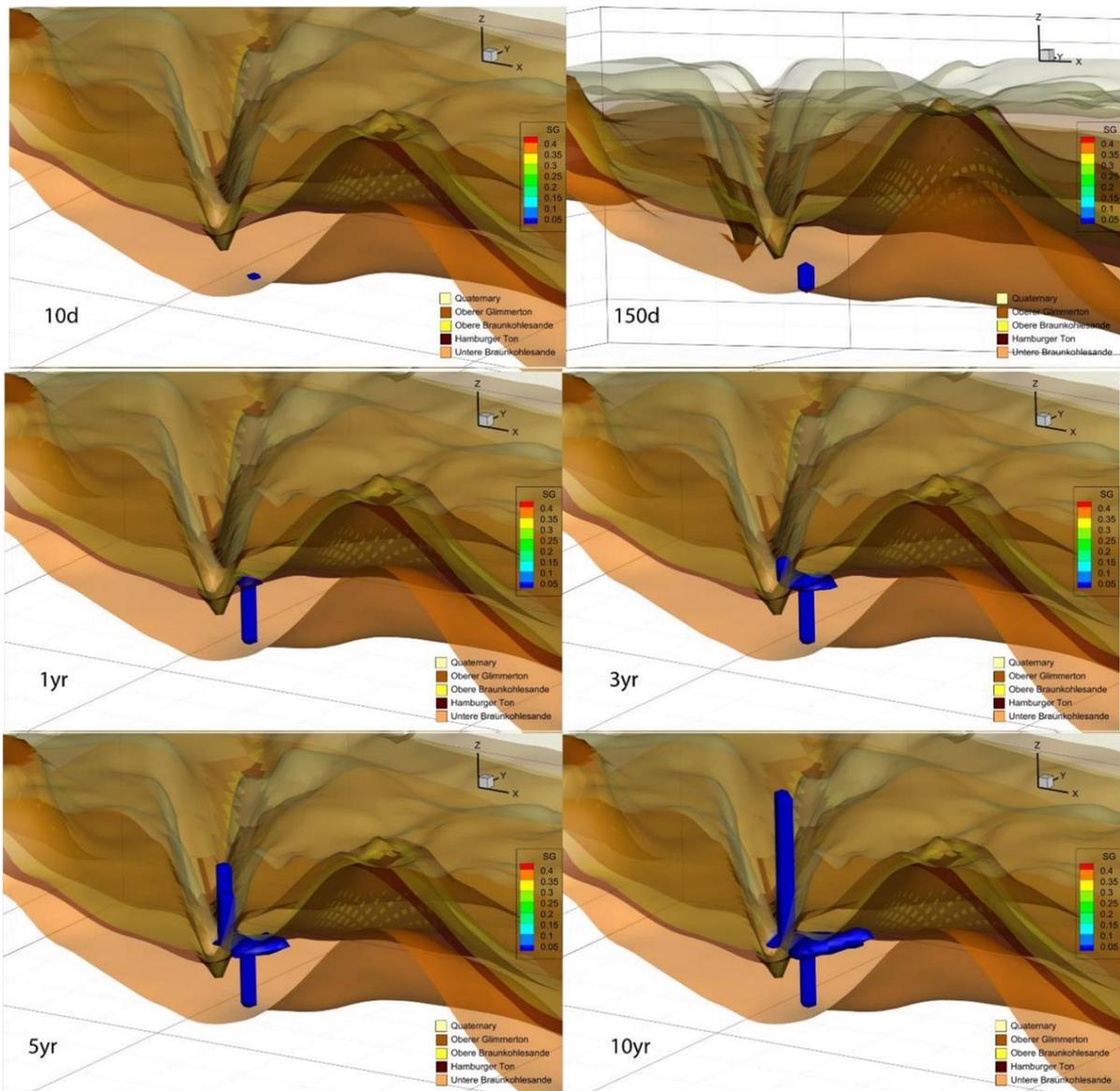


Abb. 4-33: Leckageszenario 2: Zeitliche Entwicklung der Gasleckage von der Basis der unteren Braunkohlesande unterhalb des Hamburger Tons und durch die Ellerbecker Rinne bis in die Atmosphäre (Chung, 2015)

Der Gasphasenkörper ist 10 m aufgestiegen, was der Mächtigkeit einer Zelle entspricht. Nach 150 Tagen ist die Gasphase 50 m aufgestiegen und nach einem Jahr erreicht sie in 150 m Höhe

die Unterkante des Hamburger Tons. In den darauffolgenden zwei Jahren migriert das Gas in Richtung des steilsten Gradienten aufwärts unterhalb des Hamburger Tons in zwei Richtungen. Südlich der Leckage trifft das Gas auf ein für das Gas durchlässiges hydraulisches Fenster und dringt in die Ellerbecker Rinne ein, wo es vertikal bis an die Geländeoberkante migriert. Die laterale Migration unterhalb des Hamburger Tons verläuft langsamer als die Migration des Gases in vertikaler Richtung durch das Quartär, da es dort ungehindert ohne Widerstand eines hangenden Grundwasserstauers auf direktem Wege aufsteigen kann.

4.8.2 Leckageszenario 8

Die Luft* tritt in die Modellschicht der unteren Braunkohlesande ein und migriert vertikal bis unter den hangenden Stauer, den Hamburger Ton (Abb. 4-34).

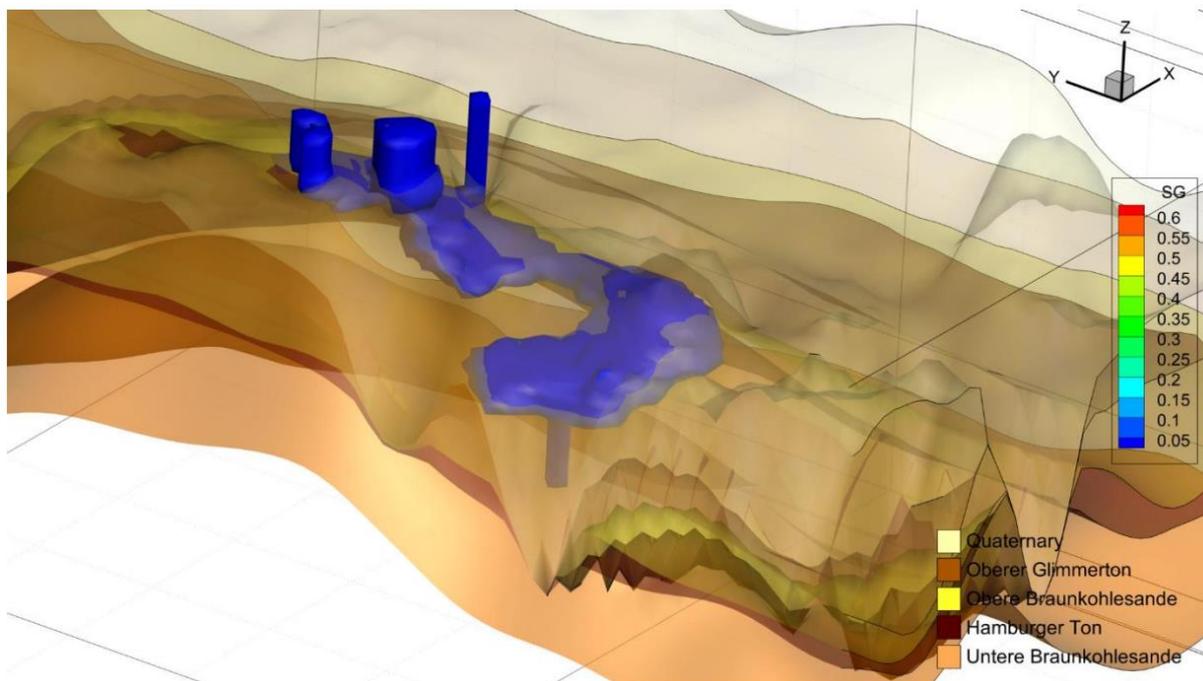


Abb. 4-34: Leckageszenario 8: Luft* Migration von den unteren Braunkohlesanden bis ins Quartär (Chung, 2015)

Der Grundwasserstauer fällt in westliche Richtung (y-Richtung) ein, damit migriert das Gas Richtung Osten. Die geologische Struktur wurde in diesem Bereich tektonisch durch das Aufsteigen des Quickborner Salzstockes beeinflusst, was zu einer Aufschleppung der Schichten geführt hat. Damit ändern sich im Nahbereich des Salzstockes die Einfallswinkel und Richtungen der Schichten. Das Gas ändert nach einem Migrationsweg von etwa 5 km – dem der Un-

terkante des Hamburger Tons folgend – seine Richtung um 90° in nördliche Richtung und migriert die Flanke des Salzstockes aufwärts. Nach etwa 8 km erreicht das Gas die Kuppe des Salzdomes. Durch hydraulische Fenster migriert das Gas durch das hier als homogen betrachtete Quartär.

Das Ausbreitungsverhalten hängt im Wesentlichen vom Relief der hangenden Grundwassertauer und hydraulischen Wegsamkeiten ab. Daher spielt in den vorliegenden Szenarien die Position der Leckage eine entscheidende Rolle für die Entwicklung des Phasenkörpers. Ausgehend von der Leckageposition und vor dem Hintergrund der geologischen Gegebenheiten lassen sich anhand der insgesamt 9 simulierten Leckageszenarien drei typische Migrationsszenarien identifizieren:

- a) Migration eines Gases unterhalb der Hamburger Tons
- b) Migration eines Gases durch eine Rinnenstruktur
- c) Migration und Akkumulation eines Gasphasenkörpers im Nahbereich von Salzstrukturen

4.8.3 Migration eines Gases unterhalb des Hamburger Tons

In den Szenarien 3,6,5 und 9 breitet sich Luft* in 25 Jahren Simulationszeit unter dem für das Gas undurchlässigen Hamburger Ton nach seinem Aufstieg flächig aus (Abb. 4-35). Die maximale Gassättigung steigt in allen Szenarien, wie anhand der einfachen 3D-Szenarien gezeigt werden konnte, über dem Aufstiegskanal des Gases auf und beträgt in den vorliegenden Szenarien zwischen 36 % und 46 % (Tab 4-2).

Tab. 4-2: Gassättigungen und Flächen der Gasphasen in den Leckageszenarien 3, 4, 6 und 9

Leckageposition	max. Gassättigung	Ausbreitung der Gasphase [km ²]
3	0,44	13,68
5	0,45	15,76
6	0,39	12,12
9	0,46	13,32

Entsprechend der in den einzelnen Szenarien unterschiedlichen Neigungen des Hamburger Tons werden die Gasphasenkörper unterschiedlich groß in ihrem Breiten- und Längenverhältnis. Je höher der Gradient, desto schmaler und länger wird auch der Phasenkörper. Die Ausbreitung der Gasphasen ist annähernd gleich groß. Der maximale Größenunterschied liegt bei

2 km². Generell lässt sich sagen, dass eine hydraulisch undurchlässige Schicht wie der Hamburger Ton das Gas bei seinem Aufstieg zurückhält und es sich lateral ausbreiten kann, solange keine hydraulischen Fenster, Störungen oder Brunnen vorhanden sind.

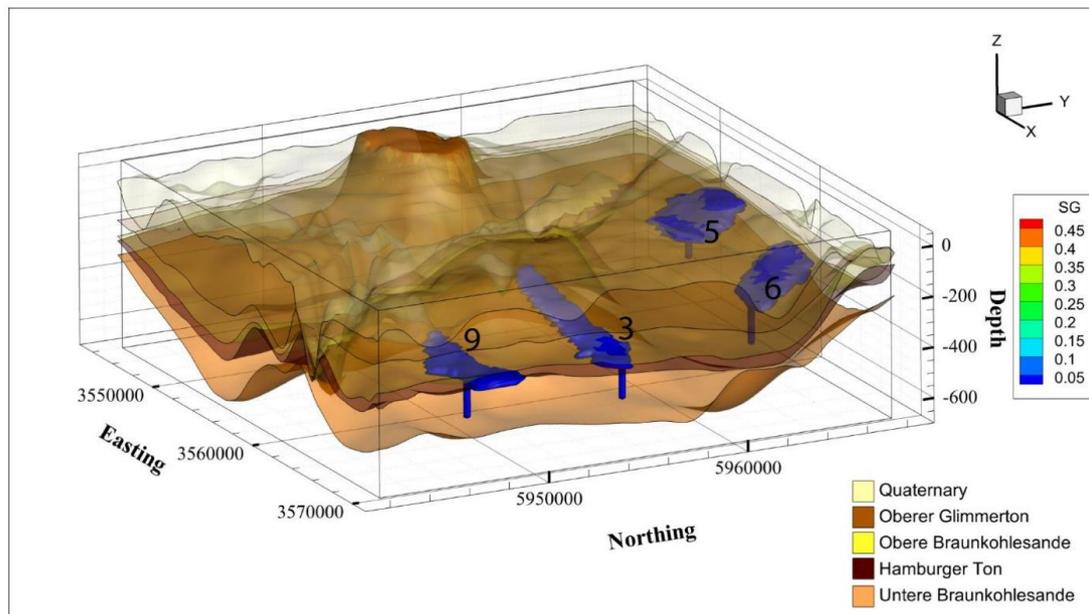


Abb. 4-35: Leckageszenarien 3, 5, 6 und 9 mit Ausbreitung unterhalb des Hamburger Tons (Chung, 2015)

4.8.4 Migration eines Gases durch eine Rinnenstruktur

In den Leckageszenarien 4 und 7 steigt die Luft zunächst bis unter den Hamburger Ton auf und breitet sich dort aus bis es an die Schnittstelle untere Braunkohlesande/Ellerbecker Rinne gelangt (Abb. 4-35). Von dort migriert das Gas innerhalb der als homogen angenommenen Rinne bis an die Geländeoberkante, da es keine hydraulischen Sperren oder Fallenstrukturen gibt, in denen das Gas akkumulieren kann. Das Leckageszenario 4 ergibt nach 25 Jahren Leckagezeit einen Gasphasenkörper mit einer lateralen Ausbreitung von 15,7 km² und einer maximalen Sättigung von 49 %. Aus dem Leckageszenario 7 ergibt sich eine Gasphase mit einer lateralen Ausdehnung von 13,3 km² und einer maximalen Gassättigung von 41%. Für die Szenarien im Elmshorn-Modell wurde das Quartär vereinfacht als homogen angenommen, so dass der Gasanstieg in der Rinne ungestört aufwärtsgerichtet ist. Diese starke Vereinfachung kann nicht für die Realität gelten. Weil die glazialen Sedimentabfolgen des Quartärs sehr heterogen sind und daher in der Regel keine durchgehenden Schichten ausbilden, kann das Gas mit großer Wahrscheinlichkeit bis an die Geländeoberkante migrieren. Glaziale Rinnenstrukturen sind also potentiell Strukturen, in denen Gas schnell aufsteigen kann.

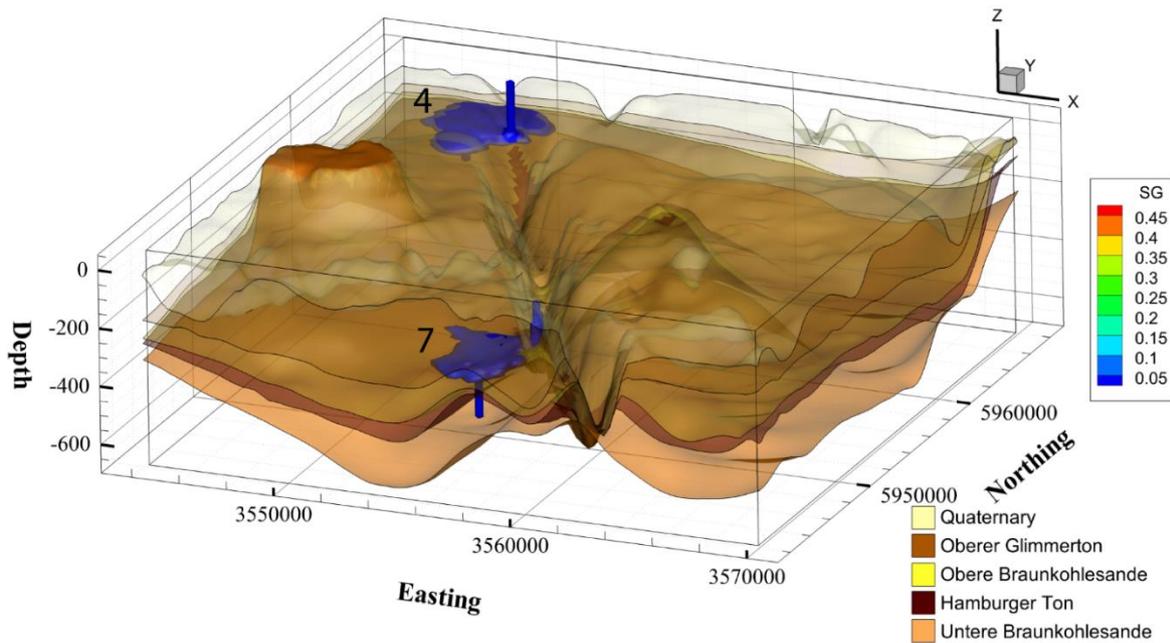


Abb. 4-36: Leckageszenarien 4 und 7 mit Ausbreitung unterhalb des Hamburger Tons und durch die Ellerbecker Rinne (nach Chung, 2015)

4.8.5 Migration und Akkumulation eines Gasphasenkörpers im Nahbereich von Salzstrukturen

Die dichtegetriebene Aufwärtsmigration der im Zechstein abgelagerten Salze bildet im Raum Elmshorn im Nahbereich der Salzstrukturen Aufschleppungen der geologischen Schichten an den Flanken des Salzstockes und führt damit zu Fallenstrukturen. Die Leckageszenarien 1, 2 und 8 (Abb. 4-37) zeigen, dass das Gas unterhalb des Hamburger Tons dem Gradienten der aufgeschleppten Schichten folgend in Richtung Salzstock migriert. Mit veränderter Einfallrichtung des steilsten Gradienten ändert sich die Strömungsrichtung des Gases. Wie in Leckageszenario 8 gelangt das Gas in eine Fallenstruktur, akkumuliert sich dort und die Gassättigung steigt an. Die domartige Struktur der Gasphase in Szenario 1 ist darauf zurückzuführen, dass sich dort eine lokale Fallenstruktur gebildet hat. Auch hier steigt die Gassättigung an. Wird das Gas nicht in einer Fallenstruktur gehalten, migriert es weiter aufwärts. Im Fall des Leckageszenarios 8 migriert das Gas durch hydraulische Fenster, die sich durch Hebung und Erosion oberhalb des Quickborner Salzstockes gebildet haben und kann damit ungehindert in die Atmosphäre gelangen. Die Szenarien 1 und 2, in denen sich das Gas akkumuliert oder geradewegs an die Geländeoberkante migriert, haben eine laterale Ausbreitung von etwa 9 km². In Szenario 8 legt das Gas einen deutlich längeren Migrationspfad zurück, bevor es letztendlich bis an die Geländeoberkante gelangt. Der Gasphasenkörper breitet sich über 14 km² aus.

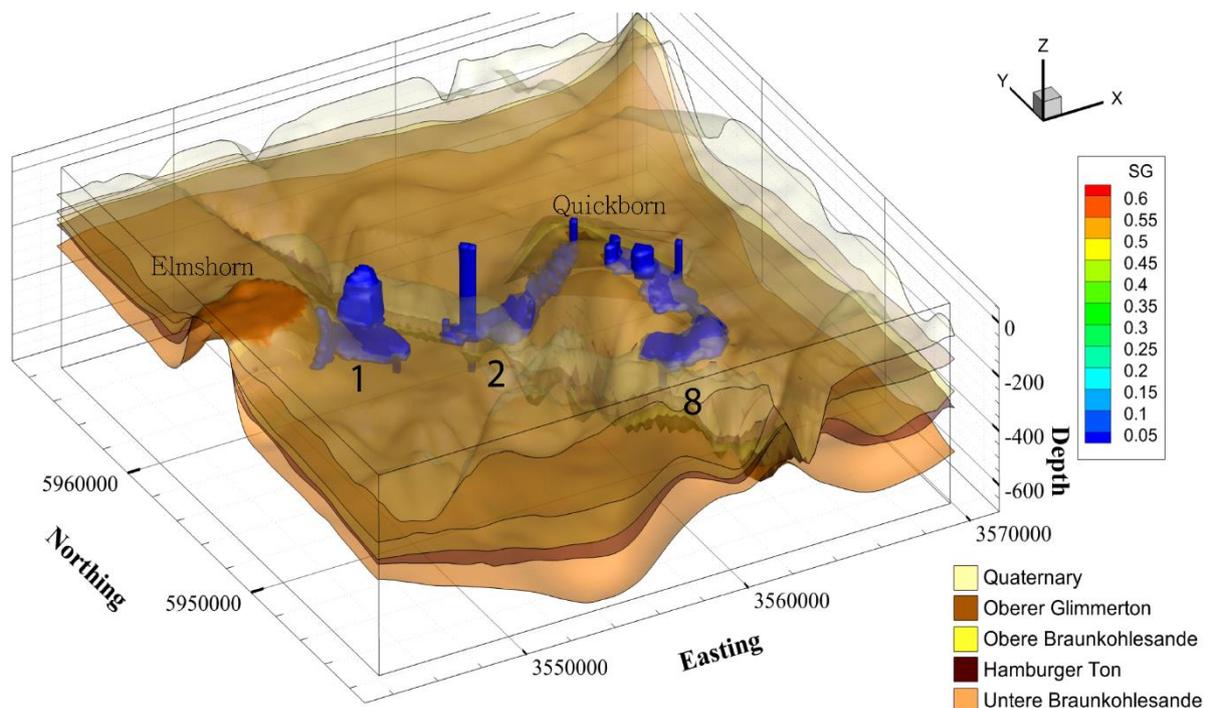


Abb. 4-37: Gasmigration im Nahbereich von Salzstöcken (Chung, 2015)

Die Szenarien zeigen, dass geologische Strukturen die laterale Ausbreitung stark beeinflussen können, abhängig vom Verlauf undurchlässiger Schichten und hydraulischen Wegsamkeiten. Zwar lässt sich anhand der vorgestellten Szenarien keine quantitative Aussage treffen, aber prinzipielle Migrationspfade können identifiziert werden. Die Szenarien zum CLEAN- und zum Elmshorn-Standort wurden verwendet, um geophysikalische Monitoringmethoden mittels numerischer Modelle zu evaluieren.

5. Diskussion und Fazit

5.1 Ausbreitungsverhalten von gasförmigem CO₂ und der daraus entstehende Impact im Grundwasserleiter

Die Parameterstudie hat gezeigt, dass die Leckagerate, die effektive Porosität und der vorherrschende hydrostatische Druck den größten Einfluss auf die Ausbreitung des CO₂-Gasphasenkörpers haben. Temperatur und Permeabilität hingegen sind weniger sensitiv. Eine geringere Leckagerate, eine Erhöhung der Porosität sowie des Formationsdrucks führen zu einer Verkleinerung des Gasphasenkörpers. Die Leckagerate lässt sich aktuell schlecht prognostizieren, da entsprechende Erfahrungswerte aus CCS-Projekten fehlen und höchstens auf Naturanaloga zurückgegriffen werden kann (z.B. Harvey et al., 2012; Celia and Nordbottom, 2009). Auch numerische Simulationen und analytische Lösungen zur Abschätzung von Leckageraten müssen kritisch betrachtet werden: Die Leckagepfade sind schlecht zu parametrisieren, diesbezüglich ist Datenakquise notwendig (Celia and Nordbottom, 2011, Zahasky and Benson, 2016).

Die Leckagerate definiert die in den Aquifer eingebrachte Masse, daher sollten an realen Standorten numerische Szenariosimulationen durchgeführt werden, welche die räumliche und zeitliche Entwicklung des Impactes unter Variation der Leckagerate abschätzen. Das durch eine Leckage entstehende Volumen des Gasphasenkörpers sowie die Gassättigung innerhalb des Phasenkörpers werden auch durch das Lösungsverhalten des CO₂ im Wasser definiert. Die Löslichkeit von CO₂ nimmt mit zunehmendem Druck; also mit der Tiefe des Aquifers zu.

Einen bedeutenderen Einfluss spielt die Grundwasserströmungsgeschwindigkeit für die Lösung des CO₂ im Wasser. Strömt Wasser am Phasenkörper vorbei, wird das im Wasser gelöste CO₂ in den Abstrom des Phasenkörpers transportiert und es strömt CO₂ untersättigtes Wasser an der Gasphase vorbei, was eine erhöhte Lösung ermöglicht. Mit dem Abtransport von Gas in gelöster Form schrumpft die Gasphase. Das Verhältnis zwischen Leckagerate und Grundwasserströmung definiert sowohl die Größe des Gasphasenkörpers als auch die Größe der sich ausbreitenden Fahne gelösten CO₂. Ohne Grundwasserströmung sind der Gasphasenkörper und die Fahne des im Wasser gelösten CO₂ annähernd gleich groß, Diffusions- und Dispersionsprozesse können den Bereich mit gelöstem CO₂ gegenüber der Gasphase vergrößern.

Diffusionsprozesse wurden in der vorliegenden Arbeit nicht untersucht, allerdings ist davon auszugehen, dass die Diffusion auf der betrachteten Größenskala (Meterbereich) eine untergeordnete Rolle spielt (Kinzelbach, 1987).

Hou et al. (2014) haben im Zusammenhang mit einer Risikoanalyse die Parameter Leckagerate, Porosität und Permeabilität auf ihre Sensitivität hinsichtlich ihres Einflusses auf die Ausbreitung der CO₂-Gasphase an einem Standort in Texas untersucht. Das dafür verwendete numerische Modell hat eine laterale Erstreckung von 10⁵ km². Auch wenn ihr Modellgebiet im Vergleich zu den hier vorgestellten Modellen deutlich größer ist, kommen die Autoren ebenfalls zu dem Schluss, dass die Parameter Leckagerate, Porosität und Permeabilität in Bezug auf das Ausbreitungsverhalten des Gases eine Signifikanz aufweisen.

Nicht untersucht wurde in der vorliegenden Arbeit der Einfluss der vertikalen Permeabilität. Sie wurde entsprechend der gängigen Methode für die Simulation von Grundwasserströmung mit einem Zehntel der horizontalen Permeabilität angenommen. Damit soll die Heterogenität berücksichtigt werden, die durch die laterale Schichtung von Sedimenten entsteht.

Bouquet et al. (2016) simulierten in ihrer Arbeit CO₂-Aufstiegsszenarien, in denen sie unter anderem die vertikale Permeabilität variierten. Im Vergleich mit einem homogenen Basisszenario zeigen sie, dass der Gasphasenkörper, der sich in einem heterogenen Grundwasserleiter unter einem Stauer bildet, annähernd die gleiche Ausbreitung hat wie ein sich bildender Gasphasenkörper in einem homogenen Aquifer. Die Phasenkörper unterscheiden sich allerdings in der vertikalen Ausbreitung, da Heterogenitäten in der Vertikalen zum Auffächern der Gasphase führen (Bouquet et al. 2016). Das Volumen des Aufstiegskanals wird in Szenarien mit homogen angenommenen Aquiferen unterschätzt. Damit ist die Annahme, ein Zehntel der horizontalen Permeabilität in homogen angenommenen Aquifersystemen zu wählen, nicht ohne weiteres auf den Gastransport zu übertragen und auf jeden Fall bei der Ergebnisinterpretation zu berücksichtigen. Denn eine dünne Tonschicht kann für Wasser gering durchlässig sein, woraus sich das Zehntel in der horizontalen Permeabilität ableitet. Für Gase hingegen ist die Schicht aufgrund der aufzubringenden kapillaren Eindringdrücke undurchlässig.

Für einen potentiellen CCS-Standort, für den ein numerisches Modell für Szenarien zur Gasausbreitung erstellt werden soll, lässt sich schlussfolgern, wie Aquiferparameter die Ausbreitung von Leckagefluiden beeinflussen. Die identifizierten Parameter sollten eventuell grundsätzlich in Standortmodellen – vor dem Hintergrund der heterogenen Verteilung der Parameter

– variiert werden, um abzuschätzen, wie die natürliche Parameterspannbreite das Ausbreitungsverhalten von Leckagefluiden beeinflusst.

Die Migrationsrichtung des Gases wird durch die Morphologie des hangenden Stauers definiert. Der Phasenkörper streckt sich in Richtung des steilsten Gradienten. Je steiler der Gradient ist, desto größer ist die Streckung und die Ausbreitungsgeschwindigkeit. Der Gasphasenkörper dient als Quelle für das sich lösende CO₂. Für die Ausbreitung ist daher die Breite des Gasphasenkörpers senkrecht zur Grundwasserströmung wichtig, da sie Breite und Mächtigkeit der Fahne und damit des Impakts vorgibt. Wie lang die Fahne mit der Zeit wird, hängt von der Transportgeschwindigkeit des Grundwassers ab.

Sind Grundwasserströmung, Neigung der Aquiferoberkante sowie Transportrichtungen nicht gleichgerichtet, wird der Transport von Gas und gelöstem CO₂ separiert, was wiederum die Größe des Auswirkungsraumes beeinflusst. Innerhalb dieses Raumes führt das gelöste CO₂ zu Wechselwirkungen mit der Aquifermatrix und zu einer Veränderung der Grundwasserchemie. Wie geochemische Wechselwirkungen die Wasserqualität beeinflussen und welche Konsequenzen sich hinsichtlich der geochemischen Veränderungen ergeben, wurde in einer Vielzahl von Arbeiten untersucht, die beispielweise von Harvey et al., (2012) oder Trainer-Guitton et al., (2016) zusammengefasst wurden. Die Verbreitung der Gasphase wird in wenigen Arbeiten, etwa bei Feldexperimenten (Lions et al., 2014, Peter et al., 2012) oder Szenario-Simulationen (Lamert et al., 2012, Spangler et al., 2009, Oldenburg et al., 2006) als Quelle für die Intrusion berücksichtigt. Aber bisher fehlte die systematische Auseinandersetzung mit dem Ausbreitungsverhalten der Gasphase.

5.2 Vergleich des Ausbreitungsverhaltens unterschiedlicher Gase

In der vorliegenden Arbeit wird erstmals ein Vergleich des Ausbreitungsverhaltens unterschiedlicher Gase, die potentiell im geologischen Untergrund gespeichert werden können, vorgenommen. Die Sensitivitätsanalyse und der Vergleich der Gase CO₂, H₂, CH₄ und Luft* zeigt, dass sich Wasserstoff, Methan und Luft* sehr ähnlich verhalten. Das CO₂ hebt sich aufgrund seiner guten Löslichkeit von den anderen Gasen ab, seine Ausbreitung reagiert im Gegensatz zu den anderen Gasen sensitiver hinsichtlich Druck und Temperatur. Für die Ausbreitung der Gasphasen bedeutet eine schlechtere Löslichkeit, dass der Gasphasenkörper von Luft oder Wasserstoff größer wird als die Gasphase einer vergleichbaren CO₂-Leckage. Eigenschaften wie die Viskosität haben anscheinend keine relevante Bedeutung.

5.3 Standortsimulationen

In den Standortszenarien sind die im Detail in vereinfachten Modellen untersuchten prinzipiellen Migrationsprozesse wieder zu finden. Das Gas folgt der Aquifermorphologie, der die Form des Gasphasenkörpers beeinflusst. Ein geneigter Stauer streckt den Gasphasenkörper, und der Grundwassertransport verbreitet das gelöste CO₂.

Gelangt das Gas auf seinem Migrationspfad in eine Fallenstruktur, akkumuliert es sich dort. Mittels geophysikalischer Methoden, etwa Seismik und Elektromagnetik und Erkundungsbohrungen, können Standorte gut erkundet werden. Ein Monitoring sollte sich auf Antiklinakstrukturen konzentrieren, da sich das Gas dort akkumuliert und weil es präferenziell dorthin migriert. Führen hydraulische Wegsamkeiten durch dem Stauer über der Antiklinale, könnte Gas mit einer entsprechend hohen Wahrscheinlichkeit in die hangenden Grundwasserleiter gelangen. Deshalb sollte dieser Bereich in einem Monitoring berücksichtigt werden.

Es gibt bereits Erfahrungen aus der Gasprospektion in der Erdgasindustrie hinsichtlich des Auffindens von Fallenstrukturen und Gasen. Allerdings ist es fraglich, ob die zur Prognose der Gasmigration nötigen Gradienten der Stauerunterkante, hydraulische Fenster oder kleinräumige Störungen mit ausreichender Genauigkeit detektiert werden können, zumal sich auch die Auflösung des Untergrundes mit zunehmender Teufe schlechter wird. Hier besteht sicherlich noch Forschungsbedarf.

Oberflächennahe Aquifersysteme im norddeutschen Raum sind durch die Einwirkungen der letzten Glaziale geprägt. Durch Eisvorstöße entstandene Rinnensysteme wie die Ellerbecker Rinne schneiden lokal bis in die unteren Braunkohlesande des Tertiärs ein (Gabriel et al., 2003) und schaffen einen potentiellen Migrationspfad bis ins Quartär, je nach sedimentärer Überdeckung auch bis an die Geländeoberfläche. Die Verfüllung, also der interne Aufbau von glazialen Rinnen, ist mittels geophysikalischer Methoden gut abzubilden (Gabriel et al., 2003). Allerdings kann nicht geklärt werden, wie die Durchlässigkeiten an der Grenze zwischen den umgebenden Sedimenten und der Rinne beschaffen sind. Damit ist ungewiss, ob und wo Gas in ein Rinnensystem eindringen kann oder ob die Gasmigration gestoppt oder umgelenkt wird.

Salzstrukturen haben in der Erd- und Gasförderung eine bedeutende Rolle, da sie in Kombination mit hydraulischen Barrieren Fallensysteme bilden. Analog können die Fallenstrukturen an Flanken des Salzstocks auch als Fallenstrukturen für Gase aus der geologischen Speicherung dienen. Allerdings stellt sich hier auch die Frage, wie dicht solche Strukturen tatsächlich sind.

Weiterhin befinden sich im Umfeld von Salzstrukturen durch die Salztektonek entstandene Störungen, die potentielle Migrationswege sein können, abhängig von ihrer Sedimentfüllung. Qualitativ sind Standortmodelle in der Lage, das Ausbreitungsverhalten einer Gasphase zu prognostizieren. Mit Hilfe von Parameterstudien können so vielleicht Wahrscheinlichkeiten für die Migration von Leckagefluiden bestimmt werden. Daraus könnten wiederum Monitoringstrategien entwickelt werden. Quantitative Aussagen hinsichtlich einer Prognose für eine zeitliche Entwicklung des Gasphasenkörpers sind hinsichtlich der Unsicherheiten bei der Parametrisierung sind zur Zeit nicht möglich. Dies gilt auch für die Verteilung des Gases im Porenraum oder Konzentrationsverteilungen von Wasserinhaltsstoffen.

Hinsichtlich einer Standorterkundung hat die Sensitivitätsanalyse gezeigt, dass die Parameter Permeabilität, Porosität und der Aquiferdruck für den Aufbau eines Prognosemodells mit besonderer Sorgfalt erhoben werden sollten, da diese die Ausbreitung der Gasphase signifikant beeinflussen. Die Ausbreitung des Salzwassers hängt im Wesentlichen von den hydraulischen Parametern Porosität und Permeabilität ab. Weiterhin ist eine gute Kenntnis der Grundwasserströmung hinsichtlich der Strömungsrichtung und Geschwindigkeit erforderlich, da sie sowohl die Ausbreitung des gelösten CO₂ als auch des Salzwassers beeinflusst. Darüber hinaus sollte ein geologisches Standortmodell erstellt werden, das die Morphologie der Grundwasserstauer abbildet, um die dichtegetriebene Migration prognostizieren zu können. Der Druck des Aquifers bedingt sich hauptsächlich aus der betrachteten Teufe hervor und kann daher abgeschätzt werden. Gerade für die Erkundung oberflächennaher Aquifere sind geeignete Erkundungsmethoden hinreichend aus dem Bereich der Wasserversorgung und der Altlastenerkundung bekannt (Hölting & Coldewey, 2013). Dabei ist allerdings zu bedenken, dass mit zunehmender Aquifertiefe auch die Erkundungskosten steigen und die technische Machbarkeit an ihre Grenzen stößt.

5.4 Ausbreitungsverhalten von Salzwasser und der daraus entstehende Impact im Grundwasserleiter

Gelangt Salzwasser über eine Leckage in einen Süßwasseraquifer so schichtet sich das dichtere Salzwasser an der Basis des Aquifers ein. Die lokale Sensitivitätsanalyse zeigt, dass die Ausbreitung des Salzwassers vor allem auf die hydraulischen Parameter Porosität und Permeabilität sensitiv reagiert. Die effektive Porosität zeigt den größten Einfluss auf das Ausbreitungsverhalten. Druck und Temperatur beeinflussen die Ausbreitung der Salzwasserfahne nicht. Die

Ausbreitung des Salzwassers reagiert ebenfalls sensitiv auf die Leckagerate; sie ist jedoch zurzeit nicht prognostizierbar, und Erfahrungswerte etwa aus Naturanalogie fehlen. So muss der Größenbereich einer potentiellen Leckage zunächst abgeschätzt werden. Die Form der Salzwasserfahne hängt überwiegend von der Anwesenheit einer Grundwasserströmung ab. Ab einer Grundwasserströmung von 0.5 m/Tag dominiert der Grundwassertransport gegenüber der Dichteströmung und definiert damit die räumliche Erstreckung des Impaktes.

Der Einfluss des Dichteunterschieds und damit die Abhängigkeit der Ausbreitung von der Morphologie der Aquiferunterkante ist bei vorhandener Grundwasserströmung vernachlässigbar. Weiterhin hat sich gezeigt, dass sich bei einer punktförmigen Leckage eine schmale Fahne bildet, deren Länge über den Transport des Salzwassers mit der Grundwasserströmung definiert ist. Dabei wird die Breite der Salzwasserfahne durch die vom Grundwasser angeströmte Fläche gesteuert. Handelt es sich um einen sehr kleinen Quellbereich, so kann die Salzwasserfahne schmal werden.

Ohne Grundwasserströmung ist die Dichteströmung der dominierende Transportprozess. In diesem Fall hängt die Größe des vom Salzwasser beeinflussten Bereichs von der Neigung der Aquiferbasis ab. Unter der Annahme, dass mit zunehmender Tiefe des betrachteten Aquifers die Grundwasserströmungsgeschwindigkeit abnimmt, gewinnt die Morphologie der Aquiferbasis zunehmend an Bedeutung. In vielen Bereichen der norddeutschen Tiefebene wird mit zunehmender Tiefe der Einfluss der Salztektone auf die Morphologie des Aquifers größer (Gabriel et al., 2003). So können z.B. im Nahbereich von Salzstöcken hohe Neigungen – aber auch hohe Salinitäten – anzutreffen sein. Die Ausbreitung einer Salzwasserfahne hängt also von den Verhältnissen zwischen Grundwasserströmung, Aquiferneigung und der Intrusionsrate und Dichte des Salzwassers ab und ist damit stark standortabhängig.

5.5 Impaktbereich resultierend aus der Kombination der Impaktbereiche von CO₂ Leckagen und Salzwasserintrusionen

Pruess (2008) geht davon aus, dass bei der Leckage über einen Brunnen direkt aus der Speicherformation heraus aufgrund des Druckaufbaus zunächst Salzwasser in den Aquifer gelangt und dann gasförmiges CO₂. Weiterhin kann Salzwasser mit dem ausströmenden gasförmigen CO₂ mitgerissen werden.

Daher sollte betrachtet werden, wie der durch die Intrusion entstandene Auswirkungsraum aussieht, wenn sowohl CO₂ als auch Salzwasser in einen Aquifer gelangt. Aufbauend auf den in den vorangegangenen Kapiteln zu den einzeln betrachteten Substanzen soll anhand von einfachen Gedankenmodellen kurz dargestellt werden, wie sich ein Intrusion entwickeln könnte (Abb. 5-1).

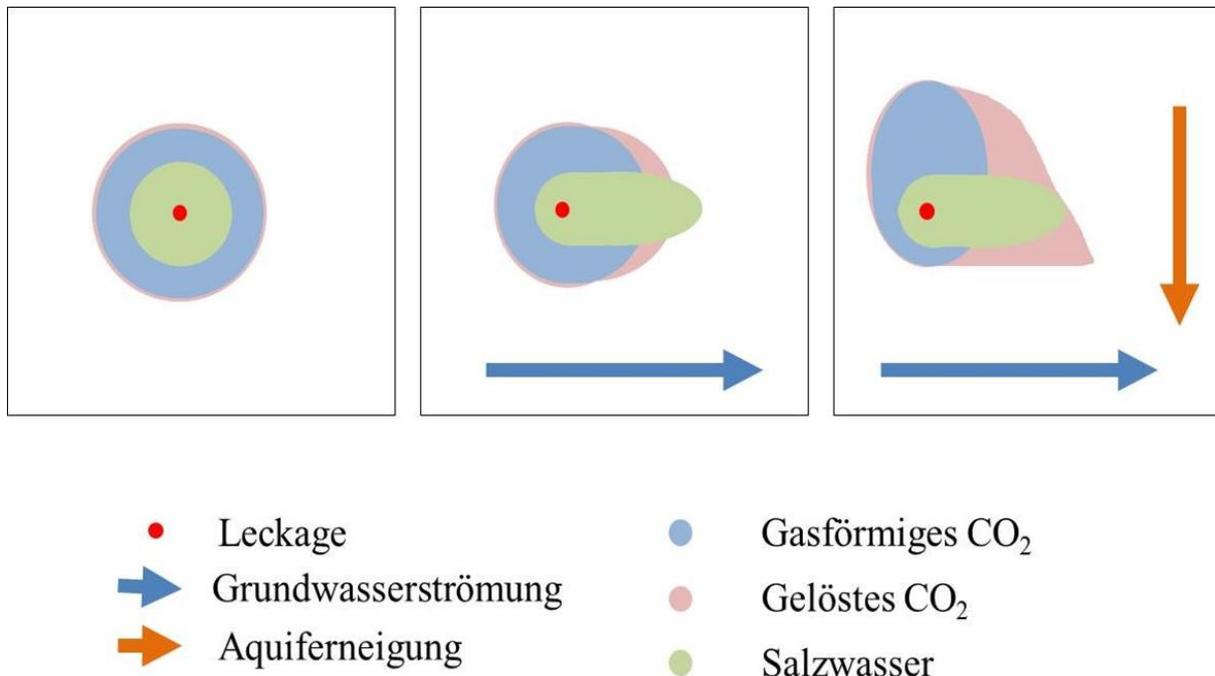


Abb. 5-1: Schematische Darstellung der potentiellen Ausbreitung von Salzwasser, gasförmigem und gelöstem CO₂ mit zunehmender Komplexität a) Szenario 1: Leckage von CO₂ und Salzwasser ohne Grundwasserströmung und Neigung des Aquifers. b) Szenario 2: Leckage von CO₂ und Salzwasser mit Grundwasserströmung und ohne Neigung des Aquifers. c) Szenario 3: Leckage von CO₂ und Salzwasser mit Grundwasserströmung und Aquiferneigung

Szenario 1: Im idealisierten Fall eines planaren, homogenen, gespannten Aquifers ohne Grundwasserströmung würde sich zuerst das Salzwasser an der Basis des Aquifers radial um die punktförmige Leckage ausbreiten (Abb. 5-1). Das CO₂ würde hingegen bis an die Oberkante des Aquifers migrieren und sich dort ebenfalls radial ausbreiten. Der entstehende Impakt würde sich auf den Bereich der Gasphase im Aufstiegskanal und unterhalb der Deckschicht sowie den Salzwasserkörper an der Basis des Aquifers beschränken. Die Größe dieses Bereiches hängt von der Dauer und der Rate der Leckage ab.

Szenario 2: Wird in Szenario 1 zusätzlich eine Grundwasserströmung angenommen, niedrig genug, dass sich eine Gasphase bilden kann, breitet diese sich unterhalb des Stauers aus und gelöstes CO₂ wird mit der Grundwasserströmung transportiert. An der Unterkannte des

Aquifers breitet sich das Salzwasser aus, das ebenfalls in Richtung der Grundwasserströmung transportiert wird. Der beeinflusste Raum setzt sich aus dem mit der Strömung transportierten Salzwasser, dem Volumen, das die Gasphase einnimmt, und der Fahne des gelösten CO₂ zusammen.

Szenario 3: Ist der Aquifer senkrecht zur Strömungsrichtung des Grundwassers geneigt, gibt es eine deutliche Separation der CO₂-Gasphase und der Fahne des gelösten CO₂. Die Breite der Fahne ist dabei so wie die Breite des durchströmten Phasenkörpers. Die Länge der Fahne ergibt sich durch die Transportgeschwindigkeit. Der gesamte Auswirkungsraum setzt sich nun zusammen aus der Gasphase, die unterhalb des Stauers entlang des steilsten Gradienten aufwärts migriert, aus der Fahne des gelösten CO₂, die sich mit fortschreitender Migration des Gases und mit dem Grundwassertransport vergrößert und aus der Salzwasserfahne, die sich an der Basis des Aquifers mit dem Grundwassertransport ausbreitet.

Würde dieses Gedankenmodell nun eine unregelmäßige – der Realität angenäherte – Morphologie von impermeablen Schichten, Heterogenitäten in den Sedimenten und komplexen geologischen Strukturen mit einbeziehen, so würde sich der Auswirkungsraum entsprechend komplexer gestalten. Das Salzwasser würde in seiner Migration nur durch die Strukturen an der Basis des Aquifers beeinflusst. Das gasförmige CO₂ hingegen würde beim Aufstieg durch den Aquifer von jeder undurchlässigen Struktur beeinflusst.

5.6 Belastbarkeit numerischer Modelle

Für die Bewertung numerischer Simulationen zur Ermittlung der möglichen Auswirkung von Salzwasser und Gasen auf eine potentiell gefährdete Schutzgutformation ist die Größe der betrachteten Skala wichtig.

Die Studie zur Zelldiskretisierung hat gezeigt, dass mit abnehmender Zellengröße die Ausbreitung des Phasenkörpers im Modell zunimmt. Weiterhin wird die Mächtigkeit des Phasenkörpers durch die Diskretisierung beeinflusst. Es hat sich gezeigt, dass bei Zellmächtigkeiten im Meterbereich die Mächtigkeit des Phasenkörpers im Modell über den gesamten Radius im Durchschnitt der Zellmächtigkeit entspricht. Damit hat die vertikale Diskretisierung einen signifikanten Einfluss auf die Gasausbreitung. In der vorliegenden Studie erhöhten sich die Radien des Phasenkörpers bei Verringerung der Diskretisierung von 5 m auf 0,1 m um 400 %. Für großskalige Modelle bedeutet dies, dass die Ausbreitung von Gasphasen überschätzt wird, eine hinreichend feine Diskretisierung bedeutet einen hohen Rechenaufwand.

Für die Ausbreitung und Verteilung der Gasphase sind große geologische Strukturen relevant. Ist die Strukturgeologie eines Standorts bekannt, kann der Aufstieg, die Verteilung und Akkumulation des gasförmigen CO₂ und der Transport des gelösten CO₂ und des Salzwassers berechnet werden. Allerdings haben Nordbotten et al. (2012) gezeigt, dass aus der Verwendung unterschiedlicher Modellcodes und unterschiedlicher Modellkonzepte hinsichtlich unterschiedlicher Vereinfachungen und Annahmen, die für das Modell benötigt werden, auch sehr unterschiedliche Ergebnisse resultieren können.

Die relevanten geochemischen Prozesse sind allerdings von kleinskaligen geochemischen und hydraulischen Heterogenitäten abhängig, die an realen Standorten nicht bekannt und kaum messbar sind. Sie sind in einem Modell auf Standortskala im Vergleich zur technisch möglichen Diskretisierung zu klein, so dass sich ein Skalenproblem ergibt (vgl. Celia & Nordbotten, 2011).

5.7 Monitoring

Wie mehrfach zuvor erklärt, breitet sich das gasförmige CO₂ primär unter der Oberkante des Aquifers aus, das gelöste CO₂ im Abstrom der Gasphase und das Salzwasser an der Basis des Aquifers. Entsprechend müssten an einer Grundwassermessstelle eine Detektionsvorrichtung für das CO₂ im oberen Bereich des Aquifers angebracht werden und eine Detektionsvorrichtung für das Salzwasser an der Aquiferbasis. Hinsichtlich der zu messenden Parameter müssen Filterstrecken definiert werden und geeignete Messparameter ausgewählt werden. Ist es z.B. möglich, einen Brunnen über die gesamte Mächtigkeit des Aquifers zu verfiltern, um bei einer Probennahme mit Hilfe von Packern zu arbeiten oder ist ein Multilevelpegel notwendig? Als Monitoringparameter würde sich die Messung der elektrischen Leitfähigkeit des Grundwassers anbieten, da sich diese sowohl durch eine Versalzung des Aquifers als auch durch Lösung von CO₂ erhöht, sobald Spuren von Kalzit in der Aquifermatrix vorhanden sind (z.B. Fahrner et al., 2012a).

Ein Monitoring für ein großes Gebiet mit einem Pegelnetzwerk zu überwachen, erfordert eine hohe Anzahl an Pegeln und ist ökonomisch nicht mehr angemessen. Daher wird Anwendung berührungsfreier geophysikalischer Messmethoden diskutiert, etwas solche, die Rückschlüsse auf die elektrische Leitfähigkeit gestatten.

Mittels einiger Gasverteilungen und Salzwasserverteilungen aus den vorgestellten Szenarien wurden unterschiedliche geophysikalische Methoden auf ihre Eignung zur Detektion von Leckagen numerisch untersucht (al Hagrey et al., 2016; Schäfer et al., 2013; Hagrey et al., 2014; Hagrey et al., 2014a; Hagrey et al., 2014b). Anhand der Szenarien der Luftausbreitung am Elmshorn Model wurde die Fragestellung untersucht, ob und ab welcher Gasmasse eine Detektion mittels seismischer, geoelektrischer und gravimetrischer Methoden möglich ist (al Hagrey et al., 2016). Dabei zeigt sich, dass eine Gasphase bereits nach 3 Jahren detektiert werden kann. Offen sind zurzeit noch die Fragen, wie sensitiv die Verfahren hinsichtlich der detektierbaren Größe des Gasphasenkörpers sind und wie sie sich unter ungünstigen Bedingungen anwenden lassen, beispielsweise unter dicken Mergel- oder Schluffschichten.

Es wird empfohlen (z.B. Chadwick et al., 2009), für oberflächennahe Aquifere am Speicherstandort vor der Injektion Basismessungen vorzunehmen. Diese Basismessungen sollten möglichst wiederholt werden, um eventuelle saisonale Parameterschwankungen zu identifizieren. Nach Beginn der Injektion des CO₂ in den Speicher werden die Messungen in definierten Abständen wiederholt und mit der Basismessung verglichen. Wird eine Anomalie festgestellt, so muss eine detaillierte lokale Erkundung zur Klärung der Ursache durchgeführt werden (Schäfer et al., 2013).

Hinsichtlich der Detektion z.B. mittels der elektrischen Leitfähigkeit des Wassers, ist nicht geklärt, ob eine vorhandene Gasphase, die die elektrische Leitfähigkeit verringert, unter Umständen das Signal des gelösten CO₂ oder des Salzwassers maskiert. Weiterhin fehlen zurzeit Aussagen, bis zu welchen Teufen eine Detektion möglich ist und inwieweit die Mächtigkeit eines Geringleiters eine Rolle spielt.

6. Literatur

Audigane, P., Gaus, I., Czernichowski-Lauriol, I., Pruess, K., & Xu, T. (2007). Two-dimensional reactive transport modeling of CO₂ injection in a saline aquifer at the Sleipner site, North Sea. *American Journal of Science*, 307(7), 974-1008.

Appelo, C. A. J., & Postma, D. (2005). *Geochemistry, groundwater and pollution*. CRC Press.

al Hagrey, S. A., Köhm, D., Wieggers, C., Schäfer, D., & Rabbel, W. (2014, October). Geophysical Monitoring of Leakages Simulated in Groundwater From Deep Energy Storages. In 2014 SEG Annual Meeting. Society of Exploration Geophysicists.

al Hagrey, S. A., Schäfer, D., Köhn, D., Wieggers, C. E., Chung, D., Dahmke, A., & Rabbel, W. (2016). Monitoring gas leakages simulated in a near surface aquifer of the Ellerbek paleo-channel. *Environmental Earth Sciences*, 75(14), 1-11.

al Hagrey, S. A., Köhn, D., Wieggers, C. E., Schäfer, D., & Rabbel, W. (2014) Geophysical monitoring of CAES leakages in shallow groundwater from deep compressed air energy

Bachu, S., & Bennion, D. B. (2009). Experimental assessment of brine and/or CO₂ leakage through well cements at reservoir conditions. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 3(4), 494-501.

Basirat, F., Niemi, A., Perroud, H., Lofi, J., Denchik, N., Lods, G., ... & Fagerlund, F. (2013). Modeling Gas Transport in the Shallow Subsurface in Maguelone Field Experiment. *Energy Procedia*, 40, 337-345.

Bauer, S., Class, H., Ebert, M., Feeser, V., Götze, H., Holzheid, A., ... & Dahmke, A. (2012). Modeling, parameterization and evaluation of monitoring methods for CO₂ storage in deep saline formations: the CO₂-MoPa project. *Environmental Earth Sciences*, 67(2), 351-367.

Bauer, S., Beyer, C., Dethlefsen, F., Dietrich, P., Duttmann, R., Ebert, M., Feeser, V., Görke, U.; Köber, R.; Kolditz, O.; Rabbel, W.; Schanz, T.; Schäfer, D.; Würdemann, H.; Dahmke, A. (2013). Impacts of the use of the geological subsurface for energy storage: an investigation concept. *Environmental earth sciences*, 70(8), 3935-3943.

Bear, J., & Bachmat, Y. (1991). *Introduction to Modeling of Transport Phenomena in Porous Media* Kluwer Academic. Publisher, Netherlands (553 pp.).

Benisch, K., & Bauer, S. (2013). Short-and long-term regional pressure build-up during CO₂ injection and its applicability for site monitoring. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 19, 220-233.

Birkholzer, J. T., Nicot, J. P., Oldenburg, C. M., Zhou, Q., Kraemer, S., & Bandilla, K. (2011). Brine flow up a well caused by pressure perturbation from geologic carbon sequestration: Static and dynamic evaluations. *International journal of greenhouse gas control*, 5(4), 850-861.

Blohm, M.; Erdmenger, C.; Ginzky, H.; Marty, M.; Beckers, R.; Briem, S.; Clausen, U.; Lohse, C.; Rechenberg, J.; Schäfer, L.; Sternkopf, R (2006) *Climate Change Technische Abscheidung und Speicherung von CO₂ – nur eine Übergangslösung*, Umweltbundesamt, Dessau <https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/publikation/long/3074.pdf>

- Borchardt, D., Ewen, C., Richter, S., & Hammerbacher, R. (2012). Der Informations- und Dialogprozess zur Sicherheit und Umweltverträglichkeit der Fracking-Technologie. *Energiwirtschaftliche Tagesfragen*, 62(10), 36.
- Bouquet, S., Bruel, D., & de Fouquet, C. (2016). Large-Scale CO₂ Storage in a Deep Saline Aquifer: Uncertainties in Predictions Due to Spatial Variability of Flow Parameters and Their Modeling. *Transport in Porous Media*, 111(1), 215-238.
- Bradshaw, J., Bachu, S., Bonijoly, D., Burruss, R., Holloway, S., Christensen, N. P., & Mathiasen, O. M. (2007). CO₂ storage capacity estimation: Issues and development of standards. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 1(1), 62-68.
- Büttner, S., (2012). Der Einfluss von Aquiferneigung und Grundwasserströmung auf die CO₂ Ausbreitung in einem oberflächennahen Aquifer. Bachelorarbeit am Institut für Geowissenschaften der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel.
- Burschil, T., Ketelsen, H., Kirsch, R., König, B., Lilienfein, M., Nommensen, B., Roeloffs, E. R., Scheer, W., Steinmann, F., Thomsen, C., Wiederhold, H., und Wolf, A. (2012): Der Untergrund von Föhr: Geologie, Grundwasser und Erdwärme; LLUR SH – Geologie und Boden 18, 102 Seiten
- Celia, M. A., & Nordbotten, J. M. (2011). How simple can we make models for CO₂ injection, migration, and leakage? *Energy Procedia*, 4, 3857-3864.
- Chadwick, R. A., Arts, R., Bentham, M., Eiken, O., Holloway, S., Kirby, G. A., Pearce, J. M., Williamson, J. P. & Zweigel, P. (2009). Review of monitoring issues and technologies associated with the long-term underground storage of carbon dioxide. Geological Society, London, Special Publications, 313(1), 257-275.
- Chalaturnyk, R., & Gunter, W. D. (2004). Geological storage of CO₂: Time frames, monitoring and verification. In *Proceedings of the 7th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-7)*: 623-632.
- Chung, D., (2015) Simulation of a Gas Migration in a Regional Aquifer System. Masterarbeit am Institut für Geowissenschaften der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel.
- Delahaye, C., Alonso, E. (1999). Modelling of gas migration in clay. <http://www.cimcc.org.ar/ojs/index.php/mc/article/view/1675/1639> (2016/03).
- Dethlefsen, F., Beyer, C., Feeser, V., & Köber, R. (2016). Parameterizability of processes in subsurface energy and mass storage. *Environmental Earth Sciences*, 75(10), 1-25.
- Duan, Z., Sun, R., Zhu, C., & Chou, I. M. (2006). An improved model for the calculation of CO₂ solubility in aqueous solutions containing Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, and SO₄²⁻. *Marine Chemistry*, 98(2), 131-139.
- Esposito A, Benson SM (2012) Evaluation and development of options for remediation of CO₂ leakage into groundwater aquifers from geologic carbon storage. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 7:62-73

Environmental Protection Agency, 2010. Federal requirements under the underground injection control (UIC) program for carbon dioxide (CO₂) geologic sequestration wells. Federal Register 75 (December 10 (237)), 77230-77303.

EU Directive, 2009/31/EC, OJ L 140/114, 5.6.2009. On the geological storage of carbon dioxide and amending Council Directive 85/337/EEC, European Parliament and Council Directives 2000/60/EC, 2001/80/EC, 2004/35/EC, 2006/12/EC, 2008/1/EC and Regulation (EC) No. 1013/200.

Fahrner, S., Schäfer, D., & Dahmke, A. (2012a). A monitoring strategy to detect CO₂ intrusion in deeper freshwater aquifers. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 9, 262-271.

Fahrner, S., Schäfer, D., Dethlefsen, F., & Dahmke, A. (2012). Reactive modelling of CO₂ intrusion into freshwater aquifers: current requirements, approaches and limitations to account for temperature and pressure effects. *Environmental Earth Sciences*, 67(8), 2269-2283.

Fischer, S., Knopf, S., May, F., & Rebscher, D. (2016). CO₂ Storage related Groundwater Impacts and Protection. *Grundwasser*, 21(1), 5-21.

Gabriel, G., Kirsch, R., Siemon, B., & Wiederhold, H. (2003). Geophysical investigation of buried Pleistocene subglacial valleys in Northern Germany. *Journal of Applied Geophysics*, 53(4), 159-180.

Gurevich, A. E., Endres, B. L., Robertson, J. O., & Chilingar, G. V. (1993). Gas migration from oil and gas fields and associated hazards. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 9(3), 223-238.

Harvey, O. R., Qafoku, N. P., Cantrell, K. J., Lee, G., Amonette, J. E., & Brown, C. F. (2012). Geochemical implications of gas leakage associated with geologic CO₂ storage - A qualitative review. *Environmental science & technology*, 47(1), 23-36.

Helmig, R. (1997): *Multiphase flow and transport processes in the subsurface. A contribution to the modeling of hydrosystems.* Environmental Engineering. Springer. Berlin; Heidelberg; New York; Barcelona; Budapest; Hong Kong; London; Milan; Paris; Santa Clara; Tokyo. 367.

Hörling, B., & Coldewey, W. G. (2013). *Allgemeine Hydrogeologie.* In *Hydrogeologie.* Spektrum Akademischer Verlag, 7-238

Hou, Z., Bacon, D. H., Engel, D. W., Lin, G., Fang, Y., Ren, H., & Fang, Z. (2014). Uncertainty analyses of CO₂ plume expansion subsequent to wellbore CO₂ leakage into aquifers. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 27, 69-80.

IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage; Intergovernmental Panel on Climate Change Cambridge Univ. Press 2005.

Keating, E. H., Newell, D. L., Viswanathan, H., Carey, J. W., Zyvoloski, G., & Pawar, R. (2012). CO₂/brine transport into shallow aquifers along fault zones. *Environmental science & technology*, 47(1), 290-297.

Keeling, C. D., Piper, S. C., Bacastow, R. B., Wahlen, M., Whorf, T. P., Heimann, M., & Meijer, H. A. (2005). Atmospheric CO₂ and ¹³CO₂ exchange with the terrestrial biosphere and oceans from 1978 to 2000: observations and carbon cycle implications. In *A history of atmospheric CO₂ and its effects on plants, animals, and ecosystems.* Springer New York, pp. 83-113

Kiessling, D., Schmidt-Hattenberger, C., Schuett, H., Schilling, F., Krueger, K., Schoebel, B., ... & CO2SINK Group. (2010). Geoelectrical methods for monitoring geological CO₂ storage: first results from cross-hole and surface-downhole measurements from the CO₂ SINK test site at Ketzin (Germany). *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 4(5), 816-826.

Kinzelbach, W. (1987). *Numerische Methoden zur Modellierung des Transports von Schadstoffen im Grundwasser* (Vol. 21). München: Oldenbourg.

Knopf, S., May, F., Müller, C., & Gerling, J. P. (2010). Neuberechnung möglicher Kapazitäten zur CO₂-Speicherung in tiefen Aquifer-Strukturen. *ET. Energiewirtschaftliche Tagesfragen*, 60(4), 76-80.

KSpG, Gesetz zur Demonstration der dauerhaften Speicherung von Kohlendioxid. (2004) <http://www.gesetze-im-internet.de/kspg/BJNR172610012.html>, Stand: 22.07.2014.

Klusman RW (2003) Rate measurements and detection of gas microseepage to the atmosphere from an enhanced oil recovery/sequestration project, Rangely, Colorado, USA. *Applied Geochemistry* 18:1825-1838.

Köber R, Wiegers CE, D. S, Dahmke A, Großmann J, Tischer L, Beyer M (2011) Ableitung eines standortspezifischen Langzeit-Monitoringkonzeptes für EGR unter Einbeziehung der rechtlichen und sicherheitstechnischen Vorgaben sowie hydrogeochemisches Monitoring im flachen Grundwasserleiter Teilprojekte Mo1 und Mo3 des Themenverbundes IV (CO₂-MONITOR) CELAN Endbericht. p 414

Kühn, M., Tesmer, M., Pilz, P., Meyer, R., Reinicke, K., Förster, A., ... & Schäfer, D. (2012). CLEAN: project overview on CO₂ large-scale enhanced gas recovery in the Altmark natural gas field (Germany). *Environmental Earth Sciences*, 67(2), 311-321.

Lassen, R. N., Sonnenborg, T. O., Jensen, K. H., & Looms, M. C. (2015). Monitoring CO₂ gas-phase migration in a shallow sand aquifer using cross-borehole ground penetrating radar. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 37, 287-298.

Lamert, H., Geistlinger, H., Werban, U., Schütze, C., Peter, A., Hornbruch, G., Schulz, A., Pohlert, M., Kalia, S., Beyer, M., Großmann, J. Dahmke, A. & Dietrich, P. (2012). Feasibility of geoelectrical monitoring and multiphase modeling for process understanding of gaseous CO₂ injection into a shallow aquifer. *Environmental Earth Sciences*, 67(2), 447-462.

Lee, K. K., Lee, S. H., Yun, S. T., & Jeon, S. W. (2016). Shallow groundwater system monitoring on controlled CO₂ release sites: a review on field experimental methods and efforts for CO₂ leakage detection. *Geosciences Journal*, 1-15.

Lemieux, J. M. (2011). Review: The potential impact of underground geological storage of carbon dioxide in deep saline aquifers on shallow groundwater resources. *Hydrogeology Journal*, 19(4), 757-778.

Leung, D. Y., Caramanna, G., & Maroto-Valer, M. M. (2014). An overview of current status of carbon dioxide capture and storage technologies. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 39, 426-443.

Lions, J., Devau, N., De Lary, L., Dupraz, S., Parmentier, M., Gombert, P., & Dictor, M. C. (2014). Potential impacts of leakage from CO₂ geological storage on geochemical processes

controlling fresh groundwater quality: A review. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 22, 165-175.

Manceau, J. C., Hatzignatiou, D. G., De Lary, L., Jensen, N. B., & Réveillère, A. (2014). Mitigation and remediation technologies and practices in case of undesired migration of CO₂ from a geological storage unit—Current status. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 22, 272-290.

Melloul, A., & Collin, M. (2006). Hydrogeological changes in coastal aquifers due to sea level rise. *Ocean & coastal management*, 49(5), 281-297.

Mualem, Y. (1976). A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water resources research*, 12(3), 513-522.

Nordbotten, J. M., Flemisch, B., Gasda, S. E., Nilsen, H. M., Fan, Y., Pickup, G. E., ... & Pruess, K. (2012). Uncertainties in practical simulation of CO₂ storage. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 9, 234-242.

Oberthür, S., & Ott, H. E. (2000). *Das Kyoto-Protokoll.: Internationale Klimapolitik für das 21. Jahrhundert*. Springer DE.

Oldenburg, C. M., & Lewicki, J. L. (2006). On leakage and seepage of CO₂ from geologic storage sites into surface water. *Environmental Geology*, 50(5), 691-705.

Oldenburg, C. M., Lewicki, J. L., Dobeck, L., & Spangler, L. (2010). Modeling gas transport in the shallow subsurface during the ZERT CO₂ release test. *Transport in porous media*, 82(1), 77-92.

Peter, A., Lamert, H., Beyer, M., Hornbruch, G., Heinrich, B., Schulz, A., ... & Dahmke, A. (2012). Investigation of the geochemical impact of CO₂ on shallow groundwater: design and implementation of a CO₂ injection test in Northeast Germany. *Environmental Earth Sciences*, 67(2), 335-349.

Pfeiffer, W. T., al Hagrey, S. A., Köhn, D., Rabbel, W., & Bauer, S. (2016). Porous media hydrogen storage at a synthetic, heterogeneous field site: numerical simulation of storage operation and geophysical monitoring. *Environmental Earth Sciences*, 75(16), 1177.

Pruess, K., Oldenburg, C. M., & Moridis, G. J. (1999). *TOUGH2 user's guide version 2*. Lawrence Berkeley National Laboratory.

Pruess, K. (2005). *ECO2N: A TOUGH2 fluid property module for mixtures of water, NaCl, and CO₂*. Berkeley: Lawrence Berkeley National Laboratory. Pruess, Karsten. "Leakage of CO₂ from geologic storage: Role of secondary accumulation at shallow depth." *International Journal of Greenhouse Gas Control* 2.1 (2008): 37-46.

Pruess, K. (2008). Leakage of CO₂ from geologic storage: Role of secondary accumulation at shallow depth. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2(1), 37-46.

Rahmstorf, S., & Schellnhuber, H. J. (2012). *Der Klimawandel: Diagnose, Prognose, Therapie* (Vol. 2366). CH Beck.

- Sato, K., Mito, S., Horie, T., Ohkuma, H., Saito, H., Watanabe, J., & Yoshimura, T. (2011). Monitoring and simulation studies for assessing macro-and meso-scale migration of CO₂ sequestered in an onshore aquifer: experiences from the Nagaoka pilot site, Japan. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 5(1), 125-137.
- Sauter, M., Helmig, R., & Klünker, J. (2012). Risiken im Geologischen System bei der Fracking-Technologie Abschätzung der Auswirkungen auf Grundwasservorkommen. *Wasser und Abfall*, 14(6), 16.
- Sauter, M., Schafmeister, M. T., Pfeiffer, S., Kuntz, D., Schiedek, T., & Himmelsbach, T. (2013). Fracking – Die Rolle der Hydrogeologie. *Grundwasser*, 18(3), 157-158.
- Schäfer, D., Al Hagrey, S., Auken, E., Bahr, A., Beyer, M., Dahmke, A., ... & Großmann, J. (2013). Environmental and process monitoring. In *CLEAN*. Springer Berlin Heidelberg, 131-167
- Scott, V., Gilfillan, S., Markusson, N., Chalmers, H., & Haszeldine, R. S. (2013). Last chance for carbon capture and storage. *Nature Climate Change*, 3(2), 105-111.
- Spangler, L. H., Dobeck, L. M., Repasky, K., Nehrir, A., Humphries, S., Barr, J., ... & Benson, S. (2009). A controlled field pilot for testing near surface CO₂ detection techniques and transport models. *Energy Procedia*, 1(1), 2143-2150.
- Thunderhead Engineering (2011): PetraSim - Interactive Model Creation for Advanced Flow, Transport and Heat Transfer Models. In: T.E.C. Inc. (Editor). Manhattan, USA.
- Trainor-Guitton, W., Mansoor, K., Sun, Y., & Carroll, S. (2016). Merits of pressure and geochemical data as indicators of CO₂/brine leakage into a heterogeneous, sedimentary aquifer. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 52, 237-249.
- Trautz, R. C., Pugh, J. D., Varadharajan, C., Zheng, L., Bianchi, M., Nico, P. S., ... & Dafflon, B. (2012). Effect of dissolved CO₂ on a shallow groundwater system: A controlled release field experiment. *Environmental science & technology*, 47(1), 298-305.
- Umweltbundesamt (2014) <http://www.umweltbundesamt.de/daten/umweltdaten/open.do> (Abrufdatum 20.11.2014)
- Van Genuchten, M. T. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils I. *Soil Science Society of America Journal*, 44(5), 892-898.
- Vangkilde-Pedersen, T., Anthonsen, K. L., Smith, N., Kirk, K., van der Meer, B., Le Gallo, Y., Bossie-Codreanu, D., Wojcicki, A., Le Nindre, Y.-M., Hendriks, C.; Dalhoff, F., Christensen, N. P. (2009). Assessing European capacity for geological storage of carbon dioxide—the EU GeoCapacity project. *Energy Procedia*, 1(1), 2663-2670.
- Watney, W. L., Nissen, S. E., Bhattacharya, S., & Young, D. (2003). Evaluation of the role of evaporite karst in the Hutchinson, Kansas, gas explosions, January 17 and 18, 2001. *Evaporite karst and engineering/environmental problems in the United States: Oklahoma Geological Survey Circular*, 109, 119-147.
- Wiederhold, H., Gabriel, G., Agster, G., Kirsch, R., Schenck, P. F., Scheer, W., & Voss, W. (2001). Geophysikalische Erkundung eiszeitlicher Rinnen im südlichen Schleswig-Holstein. *Zeitschrift für Angewandte Geologie*, 48(1), 13-26.

- Wieggers, C.E. & Schäfer, D. (2015). Numerische Szenariosimulationen zur Ausbreitung von hochmineralisiertem Wasser in oberflächennahen Süßwasseraquiferen. *Grundwasser*, 20(2), 85-95
- Wieggers C, Schäfer C, Köber R, Dahmke A (2012) Expansion and migration of gaseous and dissolved CO₂ in a site specific shallow aquifer. In: Finsterle S (ed), TOUGH Symposium 2012, Berkely, CA, USA. pp 789-796
- Wieggers, C. E., Schäfer, D., Dethlefsen, F., & Dahmke, A. (2013). Comment on “Geochemical Implications of Gas Leakage associated with Geologic CO₂ Storage A Qualitative Review”. *Environmental Science & Sechnology*, 47(9), 4949-4950.
- Wunsch, A., Navarre-Sitchler, A. K., & McCray, J. E. (2013). Geochemical implications of brine leakage into freshwater aquifers. *Groundwater*, 51(6), 855-865.
- Zahasky, C., & Benson, S. M. (2016). Evaluation of hydraulic controls for leakage intervention in carbon storage reservoirs. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 47, 86-100.
- Zhang, Y., Oldenburg, C. M., & Benson, S. M. (2004). Vadose zone remediation of carbon dioxide leakage from geologic carbon dioxide sequestration sites. *Vadose Zone Journal*, 3(3), 858-866.
- Zheng, L., Apps, J. A., Zhang, Y., Xu, T., & Birkholzer, J. T. (2009). On mobilization of lead and arsenic in groundwater in response to CO₂ leakage from deep geological storage. *Chemical geology*, 268(3), 281-297.
- Zhou, Q., Bear, J., & Bensabat, J. (2005). Saltwater upconing and decay beneath a well pumping above an interface zone. *Transport in Porous Media*, 61(3), 337-363.
- Zhou, Q., Birkholzer, J. T., Tsang, C. F., & Rutqvist, J. (2008). A method for quick assessment of CO₂ storage capacity in closed and semi-closed saline formations. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 2(4), 626-639.

7. Liste der Veröffentlichungen

- Wieggers, C.E. & Schäfer, D. (2015). Numerische Szenariosimulationen zur Ausbreitung von hochmineralisiertem Wasser in oberflächennahen Süßwasseraquiferen. *Grundwasser*, 20(2), 85-95
- Wieggers C, Schäfer C, Köber R, Dahmke A (2012) Expansion and migration of gaseous and dissolved CO₂ in a site specific shallow aquifer. In: Finsterle S (ed), TOUGH Symposium 2012, Berkely, CA, USA. pp 789-796
- Wieggers, C. E., Schäfer, D., Dethlefsen, F., & Dahmke, A. (2013). Comment on “Geochemical Implications of Gas Leakage associated with Geologic CO₂ Storage A Qualitative Review”. *Environmental science & technology*, 47(9), 4949-4950.
- al Hagrey, S. A., Köhm, D., Wieggers, C., Schäfer, D., & Rabbel, W. (2014, October). Geophysical Monitoring of Leakages Simulated in Groundwater From Deep Energy Storages. In *2014 SEG Annual Meeting*. Society of Exploration Geophysicists.
- al Hagrey, S. A., Schäfer, D., Köhn, D., Wieggers, C. E., Chung, D., Dahmke, A., & Rabbel, W. (2016). Monitoring gas leakages simulated in a near surface aquifer of the Ellerbek paleo-channel.
- al Hagrey, S. A., Schäfer, D., Köhn, D., Wieggers, C. E., Chung, D., Dahmke, A., & Rabbel, W. (2016). Monitoring gas leakages simulated in a near surface aquifer of the Ellerbek paleo-channel. *Environmental Earth Sciences*, 75(14), 1-11. *Environmental Earth Sciences*
- al Hagrey, S. A., Köhn, D., Wieggers, C. E., Schäfer, D., & Rabbel, W. Geophysical monitoring of CAES leakages in shallow groundwater from deep compressed air energy
- Großmann J., Dahmke A., Dethlefsen F., Schäfer D., Wieggers C., 2013: Mediale Anforderungen des Grundwasserschutzes an die Speicherung von CO₂ mittels CCS, Bericht für das Umweltbundesamt, unveröffentlicht.
- Fahrner, S., Schaefer, D., Wieggers, C., Köber, R., & Dahmke, A. (2011, December). Reactive and multiphase modelling for the identification of monitoring parameters to detect CO₂ intrusion into freshwater aquifers. In *AGU Fall Meeting Abstracts (Vol. 1, p. 1296)*. storage.
- Hagrey, S. A. a., Köhn, D., Wieggers, C. E., Schäfer, D., and Rabbel, W.: Geophysical monitoring of brine and compressed air leakages in groundwater from deep energy storages. in *Proceedings 23rd Salt Water Intrusion Meeting*, Husum, Germany, 1-4 (2014)
- Köber R, Wieggers CE, D. S, Dahmke A, Großmann J, Tischer L, Beyer M (2011) Ableitung eines standortspezifischen Langzeit-Monitoringkonzeptes für EGR unter Einbeziehung der rechtlichen und sicherheitstechnischen Vorgaben sowie hydrogeochemisches Monitoring im flachen Grundwasserleiter Teilprojekte Mo1 und Mo3 des Themenverbundes IV (CO₂-MONITOR) CELAN Endbericht. p 414
- Schäfer, D., Hagrey, S., Auken, E., Bahr, A., Beyer, M., Dahmke, A., Dumke, I., Foged, N., Furche, M., Gräber, M., Großmann, J., Helkjaer, M., Köber, R., Poggenburg, J., Naue, G., Schlömer, S., Seeger, C., Tischer, L., Vidal, A., Wieggers, C., and Wöhr, C.: (2013), *Environmental and Process Monitoring*, in Kühn, M., and Münch, U., eds., CLEAN.; Springer Berlin Heidelberg 131-167

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denjenigen meinen Dankaussprechen, die mich bei der Erstellung dieser Arbeit unterstützt haben.

Ich danke Prof. Dr. A. Dahmke und seiner Arbeitsgruppe, dass ich die Möglichkeit hatte dort in den Forschungsprojekten CLEAN und Angus+ meine wissenschaftliche Arbeit durchzuführen. Hier gilt ein besonderer Dank an Dirk Schäfer, der meine Arbeit in meiner Zeit an der Universität betreut hat, sowie den Kollegen, für die zahlreichen Ratschläge, Korrekturen und Diskussionen zur Verfügung standen.

Markus Ebert, gilt ein ganz besonderer Dank; er hat mir im letzten Jahr meiner Promotion mit Ratschlägen und Diskussionen zur Seite gestanden und mich dabei unterstützt im Zeitplan zu bleiben.

Prof. Dr. R. Helmig und Prof. Dr. W. Rabbel danke ich für die Übernahme der Begutachtung, dieser Arbeit.

Für die Übernahme des Lektorats gilt mein Dank Waltraut Haas.

Franziska Hellmich danke ich für die Unterstützung beim Aufstöbern von Fehlern.

Weiterhin danke ich Ivo Sindram, Sonja Reich, Tanja Fromm, Christian Liebau, Kirstin Körner, Sanne Berg, Moody Mauch, Uwe Speckenbach, Sandra Ludwig, Mareke Zorn, Lucy Wieggers und meiner Familie für Motivationshilfe, Geduld, Diskussion, Ablenkungen und emotionalen Beistand. Eure Begleitung, vor allem im letzten Jahr, hat dazu beigetragen, dass ich weitergemacht habe.