

• www.dbi-gruppe.de

# Gaswirtschaftlicher Beirat

Gas-Gas-Mischungs- und Separationsverhalten von Erdgas und Wasserstoff: Abschätzung der Auswirkungen auf die Ausspeichergasqualität in Porenspeichern

Abschlussbericht



# Impressum

#### Abschlussbericht

Gaswirtschaftlicher Beirat

Gas-Gas-Mischungs- und Separationsverhalten von Erdgas und Wasserstoff: Abschätzung der Auswirkungen auf die Ausspeichergasqualität in Porenspeichern

## Erstellt im Auftrag von

## Autoren

DBI - Gastechnologisches Institut gGmbH Freiberg

Dipl.-Ing. Nazika Moeininia, M.Sc. Seyed Reza Toufighi

## Laufzeit

01.03.2022 bis 30.11.2022

Gaswirtschaftlicher Beirat

Dr.-Ing. Jörg Nitzsche Halsbrücker Straße 34 D-09599 Freiberg

T +49 (0) 3731 4195-331 F +49 (0) 3731 4195-319

joerg.nitzsche@dbi-gruppe.de www.dbi-gruppe.de

## Durchführung

Projektleitung

Dipl.-Ing. Nazika Moeininia nazika.moeininia@dbi-gruppe.de T +49 3731 4195-362

Kontakt

DBI - Gastechnologisches Institut gGmbH Freiberg Halsbrücker Straße 34 D-09599 Freiberg

www.dbi-gruppe.de

# Kurzfassung / Management Summary

Die Langzeitspeicherung von Wasserstoff aufgrund der enorm steigenden Nachfrage nach der Nutzung erneuerbarer Energien bedingt die großvolumige Untergrundgasspeicherung (UGS) als wichtigen Beitrag zur Systemintegration und Versorgungssicherheit. Dazu können bestehende Erdgasspeicher für die Wasserstoffspeicherung umgenutzt werden, wobei trotz aller Vorteile von Wasserstoff bestimmte Herausforderungen zu lösen sind. Im Falle der Nutzung von Porenspeichern ist es aufgrund des Erdgases, das immer als Kissengas im Speicher vorhanden ist, notwendig die Fließ- und Gasmischungsprozesse bei Wasserstoffinjektion zu untersuchen. Das Ausmaß dieser Interaktionen und ihre Auswirkungen auf die Zusammensetzung des ausgespeicherten Gases sind derzeit nur unzureichend bekannt. Die aktuelle Arbeit soll eine erste Analyse und Bewertung der Mechanismen mittels Reservoirsimulationen, unter Berücksichtigung aktueller Erkenntnisse aus Forschungs- und Ingenieurprojekten, ermöglichen.

Drei generische Reservoirmodelle (homogenes 2D-, homogenes 3D- und heterogenes 3D-Modell) wurden auf Basis typischer Eigenschaften deutscher Poren-UGS erstellt. Mit Hilfe numerischer Simulationen inkl. Sensitivitätsanalyse werden die Auswirkungen der Gasmischung sowie der wichtigsten Einflussparameter auf die Prozesseffizienz untersucht. Darüber hinaus werden die Auswirkungen der numerischen Dispersion und der hydrodynamischen Dispersion auf den Vermischungsgrad bewertet.

Aus den Simulationsergebnissen ist ersichtlich, dass der extreme Dichteunterschied zwischen Wasserstoff (Arbeitsgas) und Erdgas (Kissengas, hauptsächlich Methan) zu einer starken Schwerkraftseparation führt. Das Ausmaß der Vermischung und die Schwerkraftseparation hängen stark von der Porosität und Permeabilität, sowie dem Neigungswinkel der Lagerstätte ab. Höhere Porositäten und Permeabilitäten führen zu einer geringeren Vermischung und einer stärkeren Schwerkraftseparation. Darüber hinaus kann durch Injektion des Wasserstoffs in den Top-Bereich der Formation (anstatt in tiefergelegene Flankenbereiche) der Gasvermischungsprozess technisch kontrolliert – verringert – werden.

Die Auswirkungen verfügbarer Korrelationen (EOS) zur Berechnung der Gasviskositäten und -Dichten wurden analysiert: die Ergebnisse im 2D-Modell zeigen einen identischen Vermischungsgrad bei Verwendung aller verfügbaren Korrelationen. Im homogenen 3D-Modell erhält man jedoch eine bessere Wasserstoffproduktionseffizienz bei Nutzung der PR-EOS<sup>1</sup> im Vergleich zur SRK-EOS<sup>2</sup>. In dieser Arbeit wurde keines dieser EOS-Modelle mit realen Labordaten kalibriert.

Der Einfluss der hydrodynamischen Dispersion wurde in den homogenen 2D- und 3D-Modellen untersucht, und vorab wurde die numerische Dispersion in den Modellen eliminiert, was durch a) Reduzieren der Rasterblockgröße und der Zeitschrittgröße und b) Durchführung der Berechnungsmethode des vorgelagerten Gewichtungsschemas höherer Ordnung, erzielt werden kann.

Die Wirksamkeit der zweiten Methode bei der numerischen Dispersionskontrolle ist den Simulationsergebnissen zufolge ähnlich wie bei der ersten Methode. Die zweite Methode führt jedoch zu einer geringeren Berechnungszeit. Untersuchungen zu den Auswirkungen der hydrodynamischen Dispersion auf die Gasmischung zeigen, dass die mechanische Dispersion bei hohen Fließraten der bestimmende Mechanismus ist.

Bei multizyklischer Speicherung ist zu beobachten, dass das Wasserstoffvolumen mit der Anzahl der Zyklen zunimmt, als Folge der zunehmenden Wasserstoffsättigung nach jedem Zyklus: da bei der Ausspeicherung infolge von Gasmischung immer auch ein Teil des Erdgas gefördert wird, nimmt der Wasserstoff mit der Zeit diesen Platz ein und stellt später sowohl den Arbeits- als auch den Kissengasanteil im UGS.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Peng-Robinson

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Soave-Redlich-Kwong

# Inhalt

Abb	oildungsver	zeichnis	4
Tab	ellenverze	ichnis	6
For	melzeicher	n-, Index- und Abkürzungsverzeichnis	7
1	Einleitung		9
2	Literaturü	bersicht	11
2	.1 PVT	-Parameter	. 12
	2.1.1	Viskositätsmodell	. 12
	2.1.2	Dichte auf Basis von Zustandsgleichung (EOS)	. 14
	2.1.3	Löslichkeit	. 15
2	.2 Hydi	rodynamische Parameter	. 16
	2.2.1	Molekulare Diffusion	. 16
	2.2.2	Mechanische Dispersion	16
2	.3 Geo	logische Parameter	17
3	Modellers	stellung	18
З	.1 Allge	emeine Simulationsmethodik	18
	3.1.1	Hysteresemodell	19
	3.1.2	Löslichkeitsmodell	20
З	.2 Geo	logische Parameter	21
	3.2.1	Homogenes 2D-Modell	21
	3.2.2	Homogenes 3D-Modell	22
	3.2.3	Heterogenes 3D-Modell	23
З	.3 Betri	ebsszenario	25
	3.3.1	Homogenes 2D-Modell	25
	3.3.2	Homogenes 3D-Modell	25
	3.3.3	Heterogenes 3D-Modell	27
4	Ergebniss	se und Diskussion im homogenen 2D-Konzeptmodell	28
4	.1 Geo	logische Eigenschaften	28
	4.1.1	Mächtigkeit	30
	4.1.2	Initialdruck des Reservoirs	31
	4.1.3	Porosität	31
	4.1.4	Permeabilität	32
	4.1.5	Neigung	33
4	.2 EOS	- und Viskositätsmodelle	34
4	.3 Phys	sikalische und numerische Dispersion	35
	4.3.1	Eliminierung (Minimierung) der numerischen Dispersion	36
	4.3.1.1	Verkleinerung der Rasterzellengröße und der Zeitschrittgröße	36
	4.3.1.2	Implementierung des vorgelagerten Gewichtungsschemas höherer Ordnung	38
	4.3.2	Einbeziehung der hydrodynamischen Dispersion	39

	4.3.2.1	Mechanische Dispersion	39
5	Ergebnis	se und Diskussion der homogenen und heterogenen 3D-Konzeptmodelle	44
	5.1 Kon	zeptionelles homogenes 3D-Modell	44
	5.1.1	Produziertes Wasserstoffvolumen in jedem Zyklus (Basisszenario)	44
	5.1.2	Lagerstätteneigenschaften (Porosität/Permeabilität)	45
	5.1.3	Wasserstofflöslichkeit und EOS-Modell	
	5.1.3.1	Wasserstofflöslichkeit	47
	5.1.3.2	EOS-Modell	
	5.1.4	Physikalische und numerische Streuung	49
	5.2 3D-l	Konzeptionsmodell (Heterogenität)	50
	5.2.1	Effizienz der Wasserstoffproduktion	51
	5.2.2	Zusammensetzung der Wasserstoffproduktion	52
6	Zusamm	enfassung und Schlussfolgerung	54
7	Empfehlu	ingen und zukünftige Arbeiten	56
Lit	eraturverze	chnis	57

# Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Platzhalter für Erstellung des Abbildungsverzeichnisses (Bellini 2021) 10
Abbildung 2:	Isotherme Dichte von Methan (links) und Wasserstoff (rechts) 12
Abbildung 3:	Isotherme Viskosität von Wasserstoff und Methan (links) und Viskositätsverhältnis Methan/Wasserstoff bei 45 °C (rechts) 13
Abbildung 4:	Isotherme Wasserstoff- und Methandichten (links) und Methan-/Wasserstoffdichteverhältnis bei 45°C (rechts) 14
Abbildung 5:	Wasserstofflöslichkeit bei konstantem Druck (links) und Wasserstofflöslichkeit bei konstanter Temperatur (rechts) (Lucia et al. 2015) 15
Abbildung 6:	Hystereseeffekt der relativen Gaspermeabilität auf der Grundlage des Land'schen Einschlussmodells 19
Abbildung 7:	Wasserstofflöslichkeit im thermodynamischen Gleichgewicht20
Abbildung 8:	Querschnittsansicht der anfänglichen Wassersättigungsverteilung in der Sensitivität der Wasserstofflöslichkeit in Wasser und EOS-Modell (Wasser-Gas-Kontakt 1040 m) im homogenen 3D-Konzeptmodellen 23
Abbildung 9:	Histogramme der Permeabilitätsverteilung von a) Solling b) Hardegsen c) Detfurth (Oberbank und Unterbank) und d) Volpriehausen-Formationen im heterogenen 3D-Konzeptmodellen 24
Abbildung 10:	Gasmischbereich zwischen Wasserstoff und Methan nach 1 Jahr Wasserstoffinjektion im homogenen 2D-Konzeptmodellen 28
Abbildung 11:	Querschnittsansicht der Wasserstoffsättigung nach 1 Jahr Injektion im homogenen 2D- Konzeptmodellen 30
Abbildung 12:	Einfluss der Lagerstättenmächtigkeit auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D- Konzeptmodellen 30
Abbildung 13:	Einfluss des Initialdrucks der Lagerstätte auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D- Konzeptmodellen 31
Abbildung 14:	Einfluss der Porosität der Lagerstätte auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D- Konzeptmodellen 32
Abbildung 15:	Auswirkung der horizontalen (rechts) und vertikalen (rechts) Permeabilität der Lagerstätte auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen 32
Abbildung 16:	Einfluss der Permeabilität der Lagerstätte (konstante Kh/Kv) auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen 33
Abbildung 17:	Einfluss der Lagerstättenneigung auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D- Konzeptmodellen 34
Abbildung 18:	Einfluss der Zustandsgleichung und des Viskositätsmodells auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen 35
Abbildung 19:	Definition der Vektoren i, j und k in den Richtungen x, y, z 36
Abbildung 20:	Verringerung des Einflusses der Zeitschrittgröße auf den Mischungsgrad im homogenen 2D- Konzeptmodellen 37
Abbildung 21:	Auswirkungen der Verringerung der Größe der Rasterzellen in i-Richtung auf den Vermischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen 37

Abbildung 22: Auswirk	ung der Verringerung der Rasterzellengröße in k-Richtung auf den
Durchm	nischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodell 38
Abbildung 23: Diskreti	sierung eines linearen Systems mit Blockindizes und Downstream-Richtung
(Terstap	open 2021) 38
Abbildung 24: Vergleic	ch verschiedener Methoden zur Verringerung der numerischen Dispersion im
homoge	enen 2D-Konzeptmodellen 39
Abbildung 25: Einfluss	der mechanischen Dispersion auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-
Konzep	tmodellen 40
Abbildung 26: Einfluss	der Dispersivität auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptionsmodell 41
Abbildung 27: Auswirk	tungen der molekularen Diffusion auf das Mischungsverhalten im homogenen 2D-
Konzep	tmodellen 42
Abbildung 28: Vergleid	ch des Arbeitsgasvolumens für jeden einzelnen Zyklus im homogenen 3D-
Konzep	tmodellen 45
Abbildung 29: Wasser	stoffsättigung über der Injektionsphase im homogenen 3D-Konzeptmodell: 3D-Ansicht
(links) u	Ind Querschnittsansicht (rechts) 45
Abbildung 30: Einfluss Wasser	der Eigenschaften (Porosität und Permeabilität) auf die Effizienz der stoffproduktion im homogenen 3D-Konzeptmodell 46
Abbildung 31: Durchson	chnittliche Wassersättigung während der Injektions- und Produktionszyklen im
homoge	enen 3D-Konzeptmodell 47
Abbildung 32: Kumula	tive Wasserstoffproduktion (links) und Menge des im Wasser gelösten Wasserstoffs
währen	d der Injektions- und Produktionszyklen (rechts) im homogenen 3D-Konzeptmodell 48
Abbildung 33: Auswirk	tungen des EOS-Modells auf die Wasserstofferzeugung im homogenen 3D-
Konzep	tmodell 48
Abbildung 34: Einfluss	der Dispersion auf den Mischungsgrad (links) und Auswirkung der Diffusion auf den
Mischur	ngsgrad bei unterschiedlicher Dispersion im homogenen 3D-Konzeptmodell 50
Abbildung 35: Schema	atische Darstellung des Wasserstoff-Molanteils am Ende der Injektionszeit in die
Detfurth	n-Formation (links) und die Volpriehausen-Formation (rechts) im heterogenen 3D-
Konzep	tmodell 51
Abbildung 36: Druck ir	der Bohrlochsohle bei Injektion/Produktion im heterogenen 3D-Konzeptmodell 51
Abbildung 37: Effizien	z der Wasserstoffproduktion und Wasserstoffreinheit über den Produktionszeitraum in
Detfurth	ו (links) und Volpriehausen (rechts) im heterogenen 3D-Konzeptmodell 53

# Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Physikalisch-chemische Eigenschaften von Wasserstoff und Methan (Tarkowski 2019)	9
Tabelle 2:	Modellinputparameter im homogenen 2D-Konzeptmodellen	21
Tabelle 3:	Modellinputparameter (Basisszenario) im homogenen 3D-Konzeptmodellen	22
Tabelle 4:	Modellinputparameter (Basisszenario) im heterogenen 3D-Konzeptmodellen	24
Tabelle 5:	Definierte Szenarien im homogenen 2D-Konzeptmodellen für die Sensitivitätsanalyse der geologischen Eigenschaften	25
Tabelle 6:	Definierte Szenarien im homogenen 2D-Konzeptmodellen mit der Verkleinerung der Zeitschrittweite	25
Tabelle 7:	Typische deutsche UGS-Gaszusammensetzung	26
Tabelle 8:	Ein- und Ausspeicherschema für die Untersuchung der Sensibilität der Reservoir- Eigenschaften im homogenen 3D-Konzeptmodellen	26
Tabelle 9:	Szenariodefinition und Eingabeparameter im heterogenen 3D-Konzeptmodell	27
Tabelle 10:	Sensitivitätsparameter im homogenen 2D-Konzeptmodellen	29
Tabelle 11:	Diskretisierungsempfindlichkeit Eingabeparameter im homogenen 2D-Konzeptmodellen	36
Tabelle 12:	Effektiver molekularer Diffusionswert in Abhängigkeit vom Zementierungsfaktor	42
Tabelle 13:	Hydrodynamische Ausbreitungsempfindlichkeitsfälle im homogenen 3D-Konzeptmodell	49
Tabelle 14:	Simulationsergebnisse für den 3. Zyklus der Wasserstoffspeicherung in der Detfurth- Speicherschicht im heterogenen 3D-Konzeptmodell	52
Tabelle 15:	Simulationsergebnisse für den 3. Zyklus der Wasserstoffspeicherung in der Volpriehauser Speicherschicht im heterogenen 3D-Konzeptmodell	ו- 52

# Formelzeichen-, Index- und Abkürzungsverzeichnis

#### Abkürzungen:

BHP:	Bottom Hole Pressure (Bohrlochsohlendruck)
EOS:	Equation of State (Zustandsgleichung)
Fully Imp:	Fully Implicit (Vollständig implizit)
K <sub>v</sub> :	Vertikale Permeabilität
K <sub>h</sub> :	Horizontale Permeabilität
Min:	Minimum
Max:	Maximum
NTP	Normale Temperatur und Normaler Druck (0 °C; 1,01325 bar)
PR:	Peng-Robinson
Poro:	Porosität
Perm:	Permeabilität
PVT:	Druck-Volumen-Temperatur
RS:	Rohrschuh
SRK:	Soave-Redlich-Kwong
TVD:	Total Variation Diminishing
UGS:	Untergrundgasspeicher
UHS:	Underground Hydrogen Storage (Untergrund Wasserstoffspeicher)
Vol.:	Volumen
Visc:	Viskosität

Formelzeichen	Erläuterung	Einheit
$a_L$ :	Längsdispersionsvermögen	[m]
$a_T$ :	Transversales Dispersionsvermögen	[m]
С	Landkoeffizient	[-]
$\widetilde{D}_{disp,L}$ :	Mechanische Dispersion in Längsrichtung	[m²/s]
$\widetilde{D}_{disp,T}$ :	Mechanische Dispersion in Querrichtung	[m²/s]
$D_m$ :	Mechanische Dispersion	[m²/s]
$D_e$ :	Effektive Molekulardiffusion	[m²/s]
$D_h$ :	Physikalische Dispersion oder hydrodynamische Dispersion	[m²/s]
$D_{AB}$ :	Diffusionskoeffizient zwischen Gas A und B	[cm <sup>2</sup> /s]
<i>f</i> :	Fugazität des Bestandteils	[bar]
$K_H$ :	Henry-Konstante	[mol/l/bar]
<i>M</i> :	Molekulargewichte	[g/gmol]
M(i):	Molare Masse der Komponente i	[g/gmol]

<i>P</i> :	Druck	[bar]
S <sub>gcrit</sub> :	Kritische Gassättigung	[-]
S <sub>gh</sub> :	Gassättigung bei der Strömungsumkehr	[-]
<i>T</i> :	Temperatur	[K, °C]
μ ( <i>mix</i> ):	Viskosität für Kohlenwasserstoffgemisch <sup>3</sup>	[cP]
μ ( <i>low</i> , <i>i</i> ):	Viskosität für die Komponente i <sup>4</sup>	[cP]
Ø:	Porosität	[-]
ρ	Dichte	[kg/m³]

 <sup>&</sup>lt;sup>3</sup> Anwendbar für niedrige Drücke
 <sup>4</sup> Anwendbar für niedrige Drücke

# 1 Einleitung

Wasserstoff leistet einen wesentlichen Beitrag zu den weltweiten Verpflichtungen zur Emissionsreduzierung im Rahmen der Dekarbonisierung. Die Zahl der innovativen Wasserstofftechnologien hat in letzter Zeit zugenommen, um die Energiewende zu erleichtern und zu unterstützen. Die Schlüsselrolle von Wasserstoff besteht darin, eine saubere, erschwingliche und sichere Energiezukunft zu bieten. Aufgrund der saisonalen Schwankungen der erneuerbaren Energien besteht die Notwendigkeit darin, Wasserstoff zu speichern, um saisonale Lücken zwischen Wasserstoffproduktion und -nachfrage auszugleichen. Es gilt zu analysieren, inwieweit auch bestehende Erdgas-Poren-Untergrundspeicher hierfür genutzt werden können.

Die unterirdische Wasserstoffspeicherung (Underground Hydrogen Storage, UHS) ist vom Konzept her der UGS sehr ähnlich (Tarkowski 2019). Die Stoffeigenschaften von Wasserstoff unterscheiden sich maßgeblich von Erdgas oder Methan (z.B. Dichte, Viskosität und Reaktivität) und können zu einem unerwarteten Verhalten führen (Feldmann et al. 2016), was eine weitere Untersuchung von Wasserstoff im gesamten UHS-Prozess erfordert: von den Obertageanlagen bis zum Fluidverhalten im Reservoir. Einige Unterschiede zwischen Wasserstoff und Methan sind in Tabelle 1 aufgeführt.

Eigenschaften	Wasserstoff	Methan	Einheit
Molekulare Masse	2,016	16,043	g/mol
Dichte bei NTP	0,08375	0,6682	kg/m <sup>3</sup>
Dynamische Viskosität bei 20 °C	0,88	1,1	Pa·s
Spezifische Gaskonstante	4142,2	518,28	J/kg/K
Spezifisches Gewicht	0,07	0,55	-
Kritische Temperatur	-239,96	-82,59	°C
Kritischer Druck	13,13	45,99	bar
Kritische Dichte	31,43	162,7	kg/m <sup>3</sup>
Heizwert	120-141,7	50-55,5	kJ/g

 Tabelle 1:
 Physikalisch-chemische Eigenschaften von Wasserstoff und Methan (Tarkowski 2019)

Ausgeförderte Gaslagerstätten und Erdgas-Poren-UGS können potenzielle Kandidaten für die Umwandlung in Wasserstoffspeicher sein. In solchen Reservoiren verbleibt immer eine gewisse Restmenge an Erdgas als Kissengas im Speicher, da es aufgrund von Kapillarkräften nicht vollständig gefördert werden kann.

Daher besteht eine große Notwendigkeit, das Gasmischverhalten zu der es bei der Wasserstoffeinspeicherung immer kommt und die Strömungsprozesse bei der Speicherumwandlung zu analysieren. Durch die Injektion von Wasserstoff als Arbeitsgas in das poröse Reservoir kommt es zwangsläufig zu Wechselwirkungen zwischen dem verbleibenden Erdgas (Kissengas), Wasserstoff und Formationswasser. Diese Wechselwirkungen sind ferner durch die geologischen Gegebenheiten an sich, sowie Triebmechanismen des Speichers (z.B. starker Wasserzufluss im Falle von Aquiferen) und die Speicherfahrweise (Injektions- und Produktionsraten sowie Stillstandszeiten) beeinflusst. Abbildung 1 zeigt alle geologischen Unwägbarkeiten im Zusammenhang mit der unterirdischen Wasserstoffspeicherung (Bellini 2021). In dieser Arbeit liegt das Hauptinteresse auf den Wechselwirkungen zwischen Wasserstoff und Kissengas und dem Gasmischverhalten.



Abbildung 1: Platzhalter für Erstellung des Abbildungsverzeichnisses (Bellini 2021)

Über das Ausmaß dieser Wechselwirkungen in Poren-UGS und ihre Auswirkungen auf die Zusammensetzung des Ausspeichergases gibt es bisher keine Erkenntnisse. Die vorliegende Arbeit zielt darauf ab, eine erste Analyse und Bewertung der Mechanismen durch Reservoirsimulation unter Berücksichtigung der aktuellen Erkenntnisse aus Forschungs- und auch Dienstleistungsprojekten des DBI – Gastechnologischen Instituts gGmbH zum Gasmischungsverhalten vorzunehmen. Die gewonnenen Erkenntnisse können zu einem besseren Verständnis der Gasströmungsprozesse und des Mischungsverhaltens in UGS beitragen.

# 2 Literaturübersicht

Bei der Umstellung von UGS auf Wasserstoffspeicherung ist es von entscheidender Bedeutung, praktikable Betriebsszenarien zu bestimmen, um u.a. die Qualität des Ausspeichergases und den Anteil der Wasserproduktion zu kontrollieren und auch einen frühzeitigen Wasserdurchbruch bei der Ausspeicherung zu vermeiden. Außerdem muss der Lagerstättendruck durch eine ausreichende Menge an Kissengas aufrechterhalten werden, das im Allgemeinen auf 30 bis 70 % des gesamten Gasspeichervolumens beträgt (Hassanpouryouzband et al. 2020). Die Vermischung der Gaskomponenten wird von verschiedenen Faktoren wie Mobilitätsverhältnissen, Dichteunterschieden, molekularer Diffusion und mechanischer Dispersion stark beeinflusst und lässt sich bei der multizyklischen Injektion und Förderung nicht vermeiden (Feldmann et al. 2016).

Die Gasmischung im UGS hat einen direkten Einfluss auf die Zusammensetzung des Ausspeichergases. Daher muss die Gasdurchmischung quantitativ untersucht werden, wobei zusätzliche Anpassungen bei der Gasaufbereitung notwendig werden können. In einer CO<sub>2</sub>-Speicherstudie wird der Vermischungsgrad als quantifizierender Parameter für die Gasvermischung in der Lagerstättensimulation ermittelt (Ma et al. 2019). Der Vermischungsgrad ist definiert als die Anzahl der Gitterblöcke eines Reservoirmodells, in denen die Wasserstoffzusammensetzung zwischen 10 und 90 Prozent liegt, geteilt durch die Gesamtzahl der Rasterblöcke. Um den Vermischungsgrad zu minimieren, wird in (Ma et al. 2019) beschrieben, wie der optimale Injektionsplan für die unterirdische Kohlendioxidspeicherung gewählt werden kann. Darüber hinaus werden die Auswirkungen verschiedener Parameter wie Mächtigkeit, Neigungswinkel, Temperatur, Kompressibilität, Viskosität und Dichte auf den Vermischungsgrad explizit untersucht und diskutiert. Aufgrund der Ähnlichkeiten zwischen der Wasserstoffspeicherung und der CO<sub>2</sub>-Speicherung erweist sich der Durchmischungsgrad als zuverlässiger quantifizierender Faktor bei der Beobachtung des Durchmischungsverhaltens in UHS.

Darüber hinaus diskutieren (Feldmann et al. 2016) das Mischungsverhalten von Wasserstoff bei der Verwendung verschiedener Kissengase wie Stickstoff, Kohlendioxid und Methan. In dieser Studie wird die Kopplung verschiedener im UHS vorhandener Mechanismen wie molekulare Diffusion und mechanische Dispersion in Lagerstättensimulationsmodellen berücksichtigt, die es uns schließlich ermöglichen, das Mischungsverhalten zwischen Wasserstoff und Kissengasen zu bewerten.

(Heinemann et al. 2021) konzentriert sich auf die PVT-Modellierung und erörtert die verschiedenen thermodynamischen Parameter von Wasserstoff. In Bezug auf die Gasviskosität wird in dieser Studie vorgeschlagen, alternative Gleichungen und Viskositätsmodelle anstelle der häufig verwendeten Viskositätsmodelle zu verwenden. Im Falle der Vermischung von Wasserstoff und Methan kann das vorgeschlagene Zustandsgleichungsmodell GERG-2008-EOS das Fluidverhalten des Wasserstoffs genau vorhersagen (Heinemann et al. 2021).

Wie bereits erläutert, ist das Hauptziel dieser Studie, das Mischungsverhalten von Wasserstoff mit Methan als Kissengas in den bestehenden Erdgasspeichern in Deutschland zu untersuchen. Dieses Mischungsverhalten kann durch numerische Simulationen bewertet werden, und so die wichtigsten Einflussparameter und die Prozesseffizienz ermitteln. Die sensitiven Parameter können nachfolgenden Hauptkategorien unterschieden werden:

- 1. PVT-Parameter: Druck, Viskositätsmodell, Dichte auf Basis von Zustandsgleichung (EOS-Modell) und Löslichkeit
- 2. Hydrodynamische Parameter: molekulare Diffusion und mechanische Dispersion
- 3. Geologische Parameter: Porosität, Permeabilität, Mächtigkeit und Neigungswinkel

## 2.1 PVT-Parameter

Die CMG-Software bietet ein leistungsstarkes PVT-Modellierungstool für die Zusammensetzung, Winprop. Dieses Tool ermöglicht die Modellierung des Gasverhaltens bei Variationen in der Zusammensetzung. In der verfügbaren Bibliothek von Winprop können verschiedene Gaskomponenten und ihre charakteristischen Eigenschaften, einschließlich Wasserstoff, gefunden werden. Außerdem bietet Winprop verschiedene Korrelationen zur Vorhersage des Phasenverhaltens und der Mischeigenschaften.



Abbildung 2: Isotherme Dichte von Methan (links) und Wasserstoff (rechts)

Die hier vorliegende nutzt bestehende EOS-Modelle zur Bestimmung des Fluidverhaltens. Die Auswirkungen der beiden verfügbaren EOS-Modelle in Winprop werden separat untersucht, um das Phasenverhaltens zu bewerten. Abbildung 2 zeigt die Gasdichte für Wasserstoff (rechts) und Methan (links), die mit verschiedenen EOS-Modellen berechnet wurden, die zu einem ähnlichen Dichteverhalten für Methan und zu einem geringfügigen Unterschied bei Wasserstoff führen. Im Fall von Wasserstoff ist die vorhergesagte Gasdichte im Peng Robinson (PR) EOS-Modell etwas höher als im Soave-Redlich-Kwong (SRK) EOS-Modell.

Die spezifischen Lagerstättenbedingungen (Druck und Temperatur) einer Lagerstätte haben einen erheblichen Einfluss auf das Fluid- und Mischungsverhalten von Kissengas und Arbeitsgas. Das Fluidverhaltens ist der wichtigste Faktor, der das Mischungsverhalten in den unterirdischen Lagerstätten steuert. Um das Fluidverhalten bei der Wasserstoffspeicherung richtig zu simulieren, stehen in GEM eine Reihe von Korrelationen zur Verfügung. Drei Hauptparameter, bestehend aus Viskosität, Dichte und Löslichkeit der Gase, die von GEM berechnet werden, werden in den nächsten Abschnitten kurz diskutiert.

#### 2.1.1 Viskositätsmodell

Die Viskosität als eines der Hauptkriterien im Konzept der Verdrängungseffizienz beeinflusst das Mobilitätsverhältnis erheblich. Das Mobilitätsverhältnis kann zur Vorhersage der Frontstabilität in einem Verdrängungsprozess verwendet werden, der in hohem Maße von der Phasenpermeabilität und der Phasenviskosität abhängig ist. In der Praxis führt ein höheres Mobilitätsverhältnis (größer als eins) zu viskosem Fingering und einer ungünstigen potenziell instabilen Front.

Bei der Wasserstoffspeicherung wird die Bedeutung des Viskositätsunterschieds deutlich, wenn das Mobilitätsverhältnis potenziell zu viskosem Fingering führen könnte. Daher könnte eine der größten Herausforderungen bei der Wasserstoffspeicherung darin bestehen, dieses Phänomen zu vermeiden, das durch die extrem niedrige Viskosität des Wasserstoffs verursacht wird und sich nachteilig auf die Verdrängungs-Effizienz auswirken würde.

Auch Aquifere können als potenzielle Kandidaten für die Wasserstoffspeicherung angesehen werden. Ein Hauptproblem bei der Optimierung von Betriebsszenarien besteht darin, dass die Gas-Wasser-Verdrängung aufgrund eines ungünstigen Wasserstoff-Wasser-Mobilitätsverhältnisses zu Frontinstabilitäten und viskosem Fingering neigt. In diesem Fall kann nicht nur ein großer Viskositätsunterschied, sondern auch ein großer Unterschied in der Phasenpermeabilität die durch die Wasser-Wasserstoff-Verschiebung verursachte Frontinstabilität beeinflussen. (Webb 2006; Ho and Webb 2006) stellen jedoch fest, dass aufgrund des Mischungseffekts im Gas-Gas-Verdrängungssystem die Gasfrontdispersion zur Stabilisierung der Front beitragen kann.

Bei der Umwandlung der Erdgasspeicher für Wasserstoff konnte der negative Einfluss des Viskositätsfingers aufgrund der Mischbarkeit der Gase ausgeschlossen werden. Das Mobilitätsverhältnis im Gas-Gas-System wird in erster Linie durch Viskositätsunterschiede gesteuert. Ein typisches Mobilitätsverhältnis für das System H<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub> ist in (Feldmann et al. 2016) angegeben und beträgt etwa 1,5.



Abbildung 3: Isotherme Viskosität von Wasserstoff und Methan (links) und Viskositätsverhältnis Methan/Wasserstoff bei 45 °C (rechts)

Abbildung 3 zeigt die isothermen Viskositätskurven von Methan und Wasserstoff in Abhängigkeit des Drucks unter Verwendung der Zustandsgleichung von Peng-Robinson und des Viskositätsmodells von Jossi-Stiel-Thodos (GEM 2021). Die Viskosität von Methan ist im Vergleich zu der von Wasserstoff in der linken Abbildung wesentlich druckempfindlicher. Die Darstellung des Verhältnisses zwischen Methan- und Wasserstoffviskosität in der rechten Abbildung zeigt, dass die Mobilität von Wasserstoff bei höherem Druck größer wird als die von Methan.

GEM ist in der Lage, die Viskosität des Gemischs mit verschiedenen Methoden zu korrelieren. In dieser Arbeit wird die Jossi-Stiel-Thodos-Korrelation (GEM 2021) zur Schätzung der Viskosität des Gasgemischs mit der folgenden Gleichung verwendet:

Formel 1:

$$\mu(mix) = \frac{\sum_{i=1}^{nc} \mu(low, i) x(i) \sqrt{M(i)}}{\sum_{i=1}^{nc} (i) \sqrt{M(i)}}$$

wobei:

 $\mu(mix)$ =Viskosität für Kohlenwasserstoffgemisch<sup>5</sup> $\mu(low, i)$ =Viskosität für die Komponente iM(i)=Molare Masse der Komponente i

<sup>6</sup> Anwendbar für niedrige Drücke

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Anwendbar für niedrige Drücke

In dieser Formel erfolgt die Berechnung des Terms µ (*low*, *i*) nach der Korrelation (Yoonm and Thodos 1970). Danach wird die Viskosität des Gasgemisches im Lagerstättenzustand mit Hilfe der (Jossi et al. 1962) Korrelation berechnet.

#### 2.1.2 Dichte auf Basis von Zustandsgleichung (EOS)

Wasserstoff hat eine extrem geringe Molekülgröße und ein extrem geringes Molekulargewicht im Vergleich zu dem in dieser Arbeit betrachteten Kissengas CH<sub>4</sub>. Da Molekulargewicht und Dichte eng miteinander verbunden sind, besteht ein großer Dichteunterschied zwischen Wasserstoff und Methan. Die Bedeutung dieses großen Dichtekontrasts liegt darin, dass er das Mischungsverhalten in der Lagerstätte sowie das Fließverhalten in Abhängigkeit der Bohrungsplatzierung beeinflussen kann.



Abbildung 4: Isotherme Wasserstoff- und Methandichten (links) und Methan-/Wasserstoffdichteverhältnis bei 45°C (rechts)

Die Dichte der vorliegenden Gase wird bei verschiedenen Drücken und Temperaturen mit der Peng Robinson EOS berechnet, zur Visualisierung siehe Abbildung 4. Aus der Abbildung auf der linken Seite geht hervor, dass die Dichte von Methangas mit steigendem Druck wesentlich schneller zunimmt als die von Wasserstoff. Wenn man das Methan-Wasserstoff-Dichteverhältnis gegen den Druck bei 45° C auf der rechten Seite der Abbildung 4 aufträgt, steigt dieses Verhältnis bis 200 bar stark an und nimmt dann bei höherem Druck wieder signifikant ab. Auf der linken Seite von Abbildung 4 lässt sich das beobachtete Verhalten durch den nichtlinearen Anstieg der Methandichte bei Drücken über 200 bar erklären, während die Wasserstoffdichte bis zu einem Druck von 500 bar fast linear ansteigt, sich aber jederzeit auf einem deutlich geringeren Niveau befindet, als die Methandichte.

Die Injektion von Wasserstoff in Aquifer-UGS kann aufgrund der geringen Dichte und Viskosität von Wasserstoff im Vergleich zu Wasser zu einer schlechten Verdrängung von Wasser durch Wasserstoff führen (Feldmann et al. 2016). Dies kann zu einer starken viskosen Verankerung von Wasserstoff im Wasser führen. Wasserstoff kann sich potenziell weit horizontal ausbreiten und über den Spill Point der Struktur hinaus gelangen und dementsprechend im Aquifer verloren gehen (Paterson 1983). Unter Berücksichtigung der Bedingungen für einen günstigen Verdrängungsprozess aus (Tek 1989) sowie der Erkenntnisse von (Hagemann et al. 2014) über die Auswirkung der Injektionsrate auf das Gleichgewicht zwischen Gravitations, Kapillar- und viskosen Kräften kann man zu dem Schluss kommen, dass das viskose Fingern und die Überwindung der Schwerkraft potenziell durch die Injektionsrate gesteuert werden können.

#### 2.1.3 Löslichkeit

Ein weiterer wichtiger Parameter ist die Löslichkeit der vorhandenen Gase im Lagerstättenwasser. An der Gas-Wasser-Grenzfläche kann sich eine bestimmte Menge an Gas in der wässrigen Phase lösen, bis das System ein Gleichgewicht erreicht. Die Löslichkeit wird hauptsächlich als Funktion des Drucks, der Temperatur und der Wasserzusammensetzung (insbesondere des Salzgehalts) definiert. In (Lucia et al. 2015) wird die Auswirkung von Druck, Temperatur und Salzgehalt auf die Löslichkeit von Wasserstoff in Wasser ausführlicher erörtert. Abbildung 5 veranschaulicht die Löslichkeitsdaten in den Experimenten, die der Literatur entnommen wurden, sowie ein geochemisches Modell unter Verwendung der Software PHREEQC und der Datenbank Ilnl.dat. Aus dieser Abbildung geht hervor, dass die Wasserstofflöslichkeit in reinem Wasser mit zunehmender Temperatur bei einem Druck von bis zu 140 bar ansteigt. Bei einem konstanten Druck von 1 bar nimmt die Löslichkeit reagiert sehr empfindlich auf bereits kleine Änderungen des Salzgehalts des Formationswassers. Eine Erhöhung der Salzkonzentration führt zu einer Abnahme der Wasserstofflöslichkeit.



Abbildung 5: Wasserstofflöslichkeit bei konstantem Druck (links) und Wasserstofflöslichkeit bei konstanter Temperatur (rechts) (Lucia et al. 2015)

Dieses Löslichkeitsverhalten kann durch das Henry'sche Gesetz beschrieben werden. Die Wasserstofflöslichkeit in der Wasserphase wird durch die korrigierte Form des nicht-idealen Verhaltens des Henry' schen Gesetzes bestimmt (Lucia et al. 2015).

Formel 2:

$$a_{H_2(aq)} = \frac{\phi_{H_2} P_{H_2}}{K_H} \cdot \exp\left[-\frac{\bar{v}_{H_2}}{RT} (P_{H_2} - 1)\right]$$

wobei:

 $a_{H_2(aq)}$  =Aktivität des gelösten H2 $P_{H_2}$  =Partialdruck von H2 $\bar{v}_{H_2}$  =Mittleres scheinbares molares Volumen von H2 im Druckbereich (1, P) $\phi_{H_2}$  =Fugazitätskoeffizient von H2 $K_H$  =Henry-Konstante

## 2.2 Hydrodynamische Parameter

Die hydrodynamischen Parameter sind hauptsächlich für den Gasvermischungsprozess verantwortlich. In diesem Abschnitt wird die Definition der vorliegenden Parameter gegeben.

#### 2.2.1 Molekulare Diffusion

Diffusion ist der Nettofluss derselben Moleküle zwischen Zonen mit unterschiedlichen Konzentrationen, der durch das Fick'sche Gesetz beschrieben wird. Trotz der hohen Diffusionsfähigkeit von Wasserstoffmolekülen im Vergleich zu anderen Gasen ist der Diffusionsprozess im Vergleich zum advektiven/konvektiven Transport immer noch extrem langsam. Der effektive Diffusionskoeffizient ist eine Funktion der Porosität, der Sättigung und der Tortuosität des porösen Mediums, die normalerweise geringer ist als der Diffusionskoeffizient. Wie bereits beschrieben, ist die Diffusion eine Funktion des Konzentrationsunterschieds, und zwar in der Weise, dass sie zu Beginn bei einem größeren Konzentrationsgefälle schneller abläuft und die Wirkung mit abnehmendem Konzentrationsgefälle abnimmt.

Der molekulare Diffusionskoeffizient von Wasserstoffgas wird in der Literatur in der Größenordnung von 10E-06 m<sup>2</sup>/s angegeben (Hagemann 2017). Basierend auf der Literatur hat der molekulare Diffusionseffekt nur einen minimalen Einfluss auf den Mischungsprozess im Vergleich zur Dispersivität im Falle der Umwandlung von erschöpften Gasreservoiren und Erdgas-UGS in Wasserstoffspeicher. Der in dieser Arbeit verwendete Molekulardiffusionswert wird im Kapitel 4 explizit diskutiert.

#### 2.2.2 Mechanische Dispersion

Mechanische Dispersion kann nur auftreten, wenn Druckänderungen zu einer Strömung im Reservoir führen und den Gasmischungsprozess unterstützen. Tortuosität und Heterogenität spielen bei diesem Prozess eine wichtige Rolle. Die mechanische Dispersion wird anhand der Strömungsgeschwindigkeit und -richtung beschrieben. (Scheidegger 1957) formuliert den mechanischen Dispersionskoeffizienten wie folgt:

Formel 3:

$$\widetilde{D}_{disp,L} = a_L * \|v\| \quad \& \quad \widetilde{D}_{disp,T} = a_T * \|v\|$$

wobei:

- $a_L$  = Längsdispersionsvermögen, das die lokale Änderung der Geschwindigkeit in einem porösen Medium beschreibt
- $a_T$  = Transversales Dispersionsvermögen, das die örtliche Änderung der Geschwindigkeit in einem porösen Medium beschreibt

||v|| = Geschwindigkeit

 $\widetilde{D}_{disp,L}$ = Mechanische Dispersion in Längsrichtung

 $\widetilde{D}_{disp,T}$  = Mechanische Dispersion in Querrichtung

Die Dispersivität in porösen Medien wird als eine Funktion der Heterogenität und der Tortuosität definiert. In der Literatur wird das longitudinale Dispersionsvermögen mit 1 bis 100 m angegeben, was im Allgemeinen eine oder zwei Größenordnungen größer ist als das transversale Dispersionsvermögen (Tek 1989).

Die Fließgeschwindigkeit von Fluiden in Poren-UGS beträgt in der Regel einige Meter pro Tag. Für diese Verhältnisse beträgt die mechanische Längsdispersion ungefähr 5E-04 m<sup>2</sup>/s. Dieser Wert ist etwa zwei Größenordnungen größer als die molekulare Diffusion. Somit ist der Einfluss der mechanischen Dispersion auf die Durchmischung von Gasen größer als die molekulare Diffusion (Hagemann 2017).

## 2.3 Geologische Parameter

Die Geometrie und die Eigenschaften des Reservoirs sind weitere wichtige Parameter, die das Mischungsverhalten der Gase beeinflussen. Die Analyse von (Ma et al. 2019) zeigt, wie unterschiedliche geologische und strukturelle Bedingungen das Mischungsverhalten von Methan und Kohlendioxid in einem 2D-Modell von UGS beeinflussen können. Die verwendete Methode zum Vergleich der Sensitivitätsfälle ist die Analyse des Mischungsgrads. In dieser Arbeit wird für den weiteren Simulationsansatz ein ähnliches Verfahren angewandt und im Kapitel 4 explizit diskutiert.

## 3 Modellerstellung

Die folgenden Teilkapitel beschreiben die allgemeine Vorgehensweise bei der Reservoir-Simulation sowie die erstellten Modelle.

## 3.1 Allgemeine Simulationsmethodik

Das untersuchte Reservoir ist ein Poren-UGS mit Haftwassersättigung. UGS können eine große Kapazität für die Speicherung von Wasserstoff (UHS) bieten. Die möglichen Szenarien für die Speicherung und Entnahme von Wasserstoff werden mit dem Simulator CMG-GEM anhand verschiedener konzeptioneller Reservoirmodelle simuliert. GEM ist ein Zustandsgleichungs-Simulator (EOS), der für die Simulation des Prozesses der Injektion von mischbarem Gas geeignet ist. Zusätzlich ist die Kopplung von mechanischer Dispersion und molekularer Diffusion (physikalische Dispersion) in einem Reservoirmodell mit variierender Dichte und Viskosität in CMG-GEM möglich, der daher ein geeignetes Werkzeug für die Simulation des Gasmischprozesses darstellt. Die advektiv-dispersive Formel, die einen solchen Prozess erklärt, wird wie folgt beschrieben:

Formel 4:

$$\phi \, \frac{\partial C}{\partial t} + \, \nabla \, C \, u \, - \, \nabla \, (D_h \, \nabla \, C) \phi = \, 0$$

wobei:

*D<sub>h</sub>* = Physikalische Dispersion oder hydrodynamische Dispersion

Die physikalische Dispersion (hydrodynamische Dispersion) selbst umfasst die effektive molekulare Diffusion und die mechanische Dispersion. In der folgenden Formel steht der Parameter  $\alpha$  für die Dispersivität. Dieser Parameter ist stark von der Rastergröße des Reservoir-Modells abhängig (Schulze-Makuch 2005). Der Parameter m (in  $\varphi^m$ ) beschreibt den Diffusionswiderstand, der im Allgemeinen zwischen 1,3 und 5 liegt (Dr. Li Li 2020). Aus der Definition geht hervor, dass die mechanische Dispersion mit zunehmender Geschwindigkeit zunimmt und bei einer Geschwindigkeit von Null gleich Null ist. Somit können mechanische Dispersion und effektive Diffusion bei höheren Geschwindigkeiten bzw. in statischen Situationen der dominierende Prozess sein.

Formel 5:

$$D_h = D_m + D_e = \alpha * u + D_0 \emptyset^m$$

GEM kann die folgende Materialbilanzgleichung für Komponente *i* und Phase *m* lösen (Shiralkar and Stephenson 1991):

Formel 6:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \varphi \sum_{m=1}^{n_p} \rho_m S_m C_{im} \right) = \sum_{m=1}^{n_p} \nabla k \rho_m \lambda_m C_{im} (\nabla p_m - \rho_m g \nabla d) + \sum_{m=1}^{n_p} \nabla \alpha_m |\vec{v}_m| \rho_m \nabla C_{im}$$

Zwei weitere Mechanismen, die in dieser simulationsbasierten Untersuchung berücksichtigt werden, können den Prozess der unterirdischen Wasserstoffspeicherung beeinflussen. Daher wird in den folgenden Abschnitten eine kurze Beschreibung gegeben:

- Hysteresemodell
- Löslichkeitsmodell

#### 3.1.1 Hysteresemodell

In einem Gas-Wasser-System bilden die wässrige und die Gasphase die benetzende bzw. nicht benetzende Phase. Bei aufeinanderfolgenden Zyklen der Gasinjektion und -förderung in Anwesenheit von Wasser ist die relative Permeabilität der nicht benetzenden Phase (Gas) geringer als die der benetzenden Phase. Dies lässt sich durch den Einschluss der nicht benetzenden Phase im porösen Medium begründen, der als Hystereseeffekt bekannt ist. In der Folge kann die Rückgewinnungseffizienz in jedem Betriebszyklus aufgrund der höheren Restgassättigung verringert werden.

In einem Gas-Wasser-System bilden die wässrige und die Gasphase die benetzende bzw. nicht benetzende Phase. Bei aufeinanderfolgenden Zyklen der Gasinjektion und -förderung in Anwesenheit von Wasser ist die relative Permeabilität der nicht benetzenden Phase (Gas) geringer als die des Entwässerungsszenarios. Dies lässt sich durch den Einschluss der nicht benetzenden Phase im porösen Medium begründen, der als Hystereseeffekt bekannt ist. In der Folge kann die Rückgewinnungseffizienz in jedem Betriebszyklus aufgrund der höheren Restgassättigung verringert werden.

Der Gaseinschlussprozess kann in GEM auf drei verschiedene Arten modelliert werden: Zweiphasen-Hysterese, Dreiphasen-Hysterese und Einschlussfunktion. GEM berücksichtigt diesen Hysterese-Effekt, indem es die maximale Sättigung des eingeschlossenen Gases verwendet und dementsprechend die Sättigung des eingeschlossenen Gases mit Hilfe der Land-Methode berechnet.



Abbildung 6: Hystereseeffekt der relativen Gaspermeabilität auf der Grundlage des Land'schen Einschlussmodells In diesem empirischen Einschlussmodell wird die Sättigung der eingeschlossenen nicht-benetzenden Phase wie folgt formuliert:

Formel 7:

$$S_{grh} = \frac{S_{gh} - S_{gcrit}}{1 + C \left( S_{gh} - S_{gcrit} \right)}$$

wobei,

$S_{gcrit} =$	Kritische Gassättigung
$S_{gh} =$	Gassättigung bei der Strömungsumkehr
<i>C</i> =	Landkoeffizient

Der von der Art des Gesteins und des Fluids abhängige Land'sche Rückhaltefaktor wird anhand der begrenzenden Drainage- und Imbibitionskurven wie folgt geschätzt:

Formel 8:

$$C = \frac{1}{S_{gtmax} - S_{gcrit}} - \frac{1}{S_{gmax} - S_{gcrit}}$$

wobei  $S_{gmax}$  die maximale Gassättigung angibt.  $S_{gtmax}$  bezeichnet die maximale Sättigung des eingeschlossenen Gases in Verbindung mit der Aufsaugkurve oder der begrenzenden Wasserflutkurve.

#### 3.1.2 Löslichkeitsmodell

In GEM basiert das Löslichkeitsmodell auf der Gleichheit der Fugazitäten der beiden Phasen im Gleichgewicht. Das in diesem Simulator verwendete allgemeine Henry-Gesetz lautet wie folgt:

Formel 9:

$$f = x * H$$

wobei:

f = Fugazität des Bestandteils	3
--------------------------------	---

*x* = Zusammensetzung der Komponente in der wässrigen Phase

H = Konstante des Henry'schen Gesetzes

Die Wasserstofflöslichkeit ist im Allgemeinen ein langsamerer Prozess als die Hystereseeinlagerung in der Lagerstätte. In GEM wird die Löslichkeitsrate für das Löslichkeitsmodell nicht berücksichtigt. Es wird angenommen, dass die Löslichkeit im thermodynamischen Gleichgewicht modelliert wird, was die Gleichheit der Wasserstoffflüchtigkeit in der wässrigen Phase mit der Wasserstoffflüchtigkeit in der Gasphase voraussetzt. In GEM wird die Fugazität der Gas- und Wasserphase auf der Grundlage der Zustandsgleichung (EOS) bzw. des Henry'schen Gesetzes berechnet. Nach dem Henry'schen Gesetz ist die Konzentration des Gases in der wässrigen Phase proportional zu seinem Partialdruck in der Gasphase über der Flüssigkeit bei konstanter Temperatur.

H <sub>2</sub> (g)
Ун2
<u>^</u>
$\checkmark$
H <sub>2</sub> (g)
W <sub>H2</sub>

Abbildung 7: Wasserstofflöslichkeit im thermodynamischen Gleichgewicht

In dieser Arbeit wird die Methode (Li and Nghiem 1986) zur Modellierung der Löslichkeit von Wasserstoff in der wässrigen Phase verwendet. Diese Methode geht von einem geringen Temperaturgefälle innerhalb des Reservoirs (Aquifer) und einem geringen Temperaturunterschied zwischen dem injizierten H<sub>2</sub> und dem Lagerstättenwasser aus. Die Henry-Konstante wird als Funktion des Drucks mit der folgenden Formel berechnet:

Formel 10:

 $\ln H_i = \ln H_i^* + \frac{\bar{v}_i}{RT} (p - p^*)$ 

wobei:

$H_i =$	Henry-Konstante bei variiertem p und T
$H_i^* =$	Henry-Konstante bei Bezugswert p* und T
$\bar{v}_i =$	Partielles Molvolumen von i in Salzlösung

Die Menge des löslichen Wasserstoffs im Formationswasser hängt direkt vom Druck, der Temperatur und auch vom Ausmaß der Wasserstoffexposition gegenüber dem Lagerstättenwasser ab. Außerdem ist der Salzgehalt des Wassers ein entscheidender Faktor, der die Wasserstofflöslichkeit beeinflusst. Die Erhöhung des Drucks kann zu einer höheren Löslichkeit führen. Im Gegensatz dazu kann eine Erhöhung der Temperatur und des Salzgehalts die Löslichkeit verringern. Die Auswirkung des Salzgehalts auf die Wasserstofflöslichkeit in GEM wird nach (Cramer 1982) berechnet:

Formel 11:

$$\log_{10}\left(\frac{H_{salt,i}}{H_i}\right) = k_{salt,i} m_{salt}$$

wobei:

H <sub>salt,i</sub> =	Henry-Konstante der Komponente i in Salzlake
<i>H</i> <sub><i>i</i></sub> =	Henry-Konstante der Komponente i in Süßwasser
k <sub>salt,i</sub> =	Aussalzungskoeffizient für die Komponente i
m <sub>salt</sub> =	Molalität des gelösten Salzes (mol/kg H <sub>2</sub> O)

#### 3.2 Geologische Parameter

#### 3.2.1 Homogenes 2D-Modell

Es wurde für grundlegende Betrachtungen zunächst ein zweidimensionales (2D) konzeptionelles Modell mit homogener Eigenschaftsverteilung in GEM erstellt. Die tabellarischen Eingabeparameter in diesem 2D-Konzeptmodell stammen aus den verfügbaren Lagerstättendaten der UGS in Deutschland (Tabelle 2).

Tabelle 2: Modellinputparameter im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Eigenschaften	Wert	Einheit
Gesamtzahl der Rasterblöcke	8000	-
Größe des Rasters	5*1*1	m³
Mächtigkeit des Reservoirs	40	m

Eigenschaften	Wert	Einheit
Länge des Reservoirs	1000	m
Teufe (Der oberste)	1300	m
Porosität	0,2	-
Permeabilität K <sub>h</sub>	740	md
Permeabilität K <sub>v</sub>	74	md
Neigung	0	o
Gas-Wasser-Kontakt	1500	m
Temperatur	45	°C
Initialdruck	131	bar

#### 3.2.2 Homogenes 3D-Modell

Das generierte Lagerstättenmodell ist eine homogene Antiklinalstruktur, basierend auf Eigenschaften des Detfurth-Horizonts (eine der Hauptformationen des mittleren Buntsandsteins in der Stratigraphiesäule Deutschlands). Die Eingangsparameter für das Basismodell sind den durchschnittlichen Eigenschaften von deutschen UGS entnommen (Tabelle 3).

abelle 3:	Mod	Modellinputparameter (Basisszenario) im homogenen 3D-Konzeptmodellen			
		Eigenschaften	Wert	Einheit	
		Gesamtzahl der Rasterblöcke	3520	-	

Taballa 2.	Modellinnutnarameter	(Pacieszonaria)	im homogonon	2D Konzontmodollon
Tabelle 3.	wodelimpulparameler	(Dasisszenano)	) ini nomoqenen	3D-Konzeptmodellen

Gesamtzahl der Rasterblöcke	3520	-
Größe des Rasters	50*50*6	m³
Mächtigkeit des Reservoirs	30	m
Teufe (Der oberste)	997	m
Porosität	0,15	-
Permeabilität K <sub>h</sub>	426	md
Permeabilität K <sub>v</sub>	42,6	md
Neigung	8	o
Gas-Wasser-Kontakt	1500	m
Temperatur	45	°C
Initialdruck	99	bar

In der Sensitivität der Wasserstofflöslichkeit in Wasser -und EOS-Modell, bei Langzeitspeicherungen kann ein Teil des gespeicherten Wasserstoffs durch den Wasserstofflöslichkeitsmechanismus eingeschlossen werden. Dieser Beitrag hängt stark von der Verteilung der Wassersättigung in der Lagerstätte ab. Um das neue Basisszenario zu bestimmen, wird der Wasser-Gas-Kontakt von 1500 m auf 1040 m Tiefe angehoben und das Reservoirmodell mit Hilfe einer Kapillardruckkurve initialisiert. Die sich daraus ergebende anfängliche Wassersättigungsverteilung ist in Abbildung 8 dargestellt.



Abbildung 8: Querschnittsansicht der anfänglichen Wassersättigungsverteilung in der Sensitivität der Wasserstofflöslichkeit in Wasser und EOS-Modell (Wasser-Gas-Kontakt 1040 m) im homogenen 3D-Konzeptmodellen

#### 3.2.3 Heterogenes 3D-Modell

Eingangs wurde bereits diskutiert, dass verschiedene Reservoireigenschaften wie Porosität und Permeabilität sowie ihre heterogene Verteilung im Reservoir Fließwege und somit das Mischungsverhalten beeinflussen können. Aus diesem Grund wurde zusätzlich ein heterogenes konzeptionelles Reservoirmodell erstellt, das realistischen Eigenschaften (und -Verteilungen) der "Mittleren Buntsandstein"-Lagerstättenformation entspricht. Dieses Modell wurde im Feldmaßstab erstellt und besteht aus den folgenden vier Hauptlagerstättenschichten:

- Solling-Sandstein
- Hardegsen-Sandstein
- Detfurth Oberbank and Unterbank
- Volpriehausen-Sandstein

Die Heterogenität des Reservoirs wird durch die petrophysikalischen Eigenschaften der Gesteine bestimmt. Das erstellte heterogene konzeptionelle Modell ist durch bestimmte Fazies charakterisiert, die mit der regionalen Ablagerungsumgebung und dem Sedimenttransport in Deutschland korreliert werden können. Die Heterogenität der Lagerstätteneigenschaften wird also durch spezifische Litho-Fazies gesteuert. Die Ausbreitung der Heterogenität erfolgt in alle Richtungen, einschließlich lokaler dominanter Kanäle und sogar gering durchlässiger Schieferbarrieren. Permeabilitätshistogramme können die Permeabilitätsvariation in verschiedenen Reservoirschichten quantitativ darstellen (Abbildung 9). In diesen Formationen sind Mächtigkeit Sandsteinschichten mit Schieferschichten überlagert.



Abbildung 9: Histogramme der Permeabilitätsverteilung von a) Solling b) Hardegsen c) Detfurth (Oberbank und Unterbank) und d) Volpriehausen-Formationen im heterogenen 3D-Konzeptmodellen

# Die Eingangsparameter für dieses Modell basieren auf dem realen in Deutschland vorhandenen UGS und sind in Tabelle 5 zusammengefasst.

Tabelle 4: Modellinputparameter (Basisszenario) im heterogenen 3D-Konzeptmodellen

Eigenschaften	Detfurth	Volpriehausen	Einheit
Gesamtzahl der Rasterblöcke		53760	-
Größe des Rasters	50	m³	
Mächtigkeit des Reservoirs	30	80	m
Teufe (Der oberste)	487	520	m
Porosität (Durchschnitt)	0,11	0,12	-
Permeabilität K <sub>h</sub> (Durchschnitt)	73	76	md
Neigung	28		o

Eigenschaften	Detfurth	Volpriehausen	Einheit
Gas-Wasser-Kontakt	1500		m
Temperatur	45		°C
Initialdruck	46,1	46,2	bar

#### 3.3 Betriebsszenario

#### 3.3.1 Homogenes 2D-Modell

Das Betriebsszenario basiert auf einer zweijährigen Wasserstoffinjektion, gefolgt von zwei weiteren Jahren ohne Wasserstoffinjektion. Dieses Modell ist repräsentativ für einen UGS in einer ausgeförderten Lagerstätte mit einem schwachen Grundwasserleiter. Die Gassättigung entspricht also fast der anfänglichen Gassättigung und die Wassersättigung ist gleich der initialen Wassersättigung. Am Rand des Reservoirs wird Wasserstoff mit einer konstanten Rate im Dachbereich injiziert (Randbedingung ist hier "Rate constraint"). Eine zweite Randbedingung ist der Druck in der Bohrung. Das betrachtete Betriebsszenario ist in allen Sensitivitätsfällen in diesem Abschnitt gleich (Tabelle 5).

Tabelle 5:Definierte Szenarien im homogenen 2D-Konzeptmodellen für die Sensitivitätsanalyse der geologischen<br/>Eigenschaften

Eigenschaften	Wert	Einheit
H <sub>2</sub> Injektionsrate	500	m³/d i.N.
Dauer der Injektion	24	Monate
Schließzeit	24	Monate
Maximaler Speicherdruck	110	bar

Alle Sensitivitätsszenarien mit Ausnahme der Verringerung der Zeitschrittweite werden ähnlich wie im vorherigen Abschnitt angelegt. Die Eingabeparameter für die Simulation sind in Tabelle 6 zu finden. Das Simulationsszenario für die Verringerung der Zeitschrittweite zur Minimierung der numerischen Streuung wird jedoch in Abschnitt 4.3.1.1 erläutert.

Tabelle 6: Definierte Szenarien im homogenen 2D-Konzeptmodellen mit der Verkleinerung der Zeitschrittweite

Eigenschaften	Wert	Einheit
H <sub>2</sub> Injektionsrate	500	m³/d i.N.
Dauer der Injektion	12	Monate
Schließzeit	12	Monate
Maximaler Speicherdruck	110	bar

#### 3.3.2 Homogenes 3D-Modell

Am Scheitelpunkt der Lagerstätte ist eine einzelne Bohrung für Injektion und Produktion installiert (Huff-and-Puff-Methode), für die die folgenden Sensitivitätsanalysen durchgeführt werden:

- Injektion bis zum Erreichen des maximalen BHP (110 bar) mit maximaler Rate<sup>7</sup> von 300.000 m<sup>3</sup>/d i.N.
- Produktion bis zum Erreichen der Mindest-BHP (110 bar) bei einer maximalen Rate<sup>8</sup> von 150.000 m<sup>3</sup>/d i.N.

Das Reservoir ist mit Gas gesättigt und der Wasser-Gas-Kontakt liegt weit unterhalb des Reservoirs. Im Gegensatz zum 2D-Konzeptmodell wird das Reservoirmodell nicht mit reinem Methan initialisiert, sondern mit einer für deutsche UGS typischen Gaszusammensetzung, die in Tabelle 7 angegeben ist.

#### Tabelle 7: Typische deutsche UGS-Gaszusammensetzung

Zusammensetzung	Konzentration	Einheit
Methan	96,96	mol-%
Stickstoff	0,86	mol-%
Kohlendioxid	0,18	mol-%
Ethan	1,37	mol-%
Propan	0,45	mol-%
Butan	0,15	mol-%
Pentan	0,02	mol-%
Hexan+ höhere Bestandteile	0,01	mol-%

Die geplanten Szenarien für diese Sensitivität sind in Tabelle 8 zu finden. Für jeden definierten Zyklus und jedes Szenario sind die maximalen Wasserstoffinjektions- und Produktionsraten geplant, um den maximal zulässigen bzw. den anfänglichen Lagerstättendruck aufrechtzuerhalten.

Tabelle 8:Ein- und Ausspeicherschema für die Untersuchung der Sensibilität der Reservoir- Eigenschaften im<br/>homogenen 3D-Konzeptmodellen

Parameter	Wert	Einheit
Anzahl der Zyklen	3	-
Injektionskontrolle (1): max. BHP	110	bar
Injektionskontrolle (2): maximale Einspritzrate	110.000	m³/d i.N.
Dauer der Injektion	36	Monate
Schließungszeit	0	Monate
Produktionskontrolle (1): mindestens BHP	99	bar
Produktionskontrolle (2): maximale Produktionsrate	180.000	m³/d i.N.
Dauer der Produktion	36	Monate
Maximaler Speicherdruck	110	bar
Initialdruck im Reservoir	99	bar

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup> Die Injektion beginnt bei einem Wert von 300.000 m<sup>3</sup>/d i.N. und nimmt mit der Zeit ab, da sich der Druck während der Injektion aufbaut.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> Die Produktionsrate beginnt bei einem Wert von 180.000 m<sup>3</sup>/d i.N. und nimmt im Laufe der Zeit ab, während der Druck und der Produktion sinkt.

#### 3.3.3 Heterogenes 3D-Modell

Die Definition des Szenarios und die in diesem Modell verwendeten Eingabeparameter sind in Tabelle 9 aufgeführt. In bestimmten Szenarien werden die Injektions- und Entnahmeraten als identisch betrachtet, um die Auswirkungen von Heterogenität und Mächtigkeit gleichzeitig zu untersuchen. Die betrachteten Raten entsprechen realen Speicherfahrweisen. In der Zeitplanung wird der Produktionszeitraum so festgelegt, dass der anfängliche Lagerstättendruck schließlich erreicht wird.

Wie in Abschnitt 3.3.2 erläutert, wird das Gaszusammensetzungsmodell auf der Grundlage der typischen Gaszusammensetzung in den deutschen UGS-Lagerstätten initialisiert (Tabelle 7). Darüber hinaus wird der Wasser-Gas-Kontakt so definiert, dass er weit unterhalb des Lagerstättenbodens liegt, wodurch die Lagerstätte mit dem Ausgangsgas gesättigt ist.

Eigenschaften	Detfurth	Volpriehausen	Einheit
Perforationstiefe	492	522	m
Anzahl der Zyklen	3	3	-
H <sub>2</sub> Injektionsrate	300.000	300.000	m³/d i.N.
Dauer der Injektion	3	3	Monate
Schließungszeit	1	1	Monate
Produktionsrate	150.000	150.000	m³/d i.N.
Dauer der Produktion	6	6	Monate

#### Tabelle 9: Szenariodefinition und Eingabeparameter im heterogenen 3D-Konzeptmodell

# 4 Ergebnisse und Diskussion im homogenen 2D-Konzeptmodell

Ein zweidimensionales (2D) konzeptionelles Modell mit homogener Eigenschaftsverteilung wurde in GEM erstellt (Abschnitt 3.2.1) und mit Methan gesättigt. Dieses Modell wird erstellt, um explizit die Einflussparameter auf das Mischungsverhalten von Gasen zu bewerten. Nach dem definierten Szenario für den Basisfall ist das Gasmischungsverhalten in Abbildung 10 dargestellt (Abschnitt 3.3.1): bei Injektion von Wasserstoff (rot) vermischt sich der Wasserstoff mit dem Methan (blau) und es entsteht eine Mischgaszone, die sich immer weiter ausbreitet.



Abbildung 10: Gasmischbereich zwischen Wasserstoff und Methan nach 1 Jahr Wasserstoffinjektion im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Die Größe der Mischzone hat einen großen Einfluss auf die Reinheit des Wasserstoffs in den Entnahmezusammensetzungen. Wie bereits beschrieben, kann die Bestimmung des Vermischungsgrades helfen, die Mischzone zu quantifizieren. In der durchgeführten Sensitivitätsanalyse werden das Ausmaß des Mischungsgrades und die den Mischungsgrad am meisten beeinflussenden Parameter untersucht. Die Definition des Durchmischungsgrades in Anlehnung an (Ma et al. 2019) lautet wie folgt:

#### Formel 12:

Je größer der Wert des Mischungsgrades ist, desto mehr Gas kann gemischt werden. Der Mischungsgrad wird für den weiteren Vergleich des Mischungsbereichs in den verschiedenen Sensitivitätsfällen verwendet. Die Sensitivitätsanalyse in diesem Kapitel ist in drei Abschnitte unterteilt:

- Geologische Eigenschaften.
- Verfügbare EOS- und Viskositätsmodelle in GEM
- Auswirkungen der numerischen und physikalischen Dispersion

## 4.1 Geologische Eigenschaften

Die geologischen und Lagerstätteneigenschaften werden auf der Grundlage der verfügbaren Daten aus den deutschen UGS-Felddaten definiert (Tabelle 10). Die Zielparameter werden auf ihre Maximal- und

Minimalwerte gesetzt, und das Basisfallmodell wird zwischen diesen Werten erstellt (Durchschnitt der verfügbaren UGS-Daten in Deutschland). Anschließend wird der Durchmischungsgrad während der Injektionsperiode in den verschiedenen Zeitschritten und auch nach der Injektionsperiode überwacht.

Eigenschaften	Min. Wert	Basiswert (Durchschnitt in verfügbaren UGS-Da- ten)	Max. Wert	Einheit
Mächtigkeit	20	40	450	m
Initialdruck	50	131	318	bar
Temperatur	18	45	130	°C
Porosität	0,05	0,2	0,3	-
Permeabilität K <sub>h</sub>	37	740	3000	md
Permeabilität K <sub>v</sub>	37	74	148	md
Neigung	-10	0	+10	o

Tabelle 10: Sensitivitätsparameter im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Das qualitative Schema der Mischungsregion in den definierten Szenarien (Abschnitt 3.3.1) ist in Abbildung 11 dargestellt. In jedem Szenario wird nur eine Variable variiert, um ihre Auswirkungen auf den Durchmischungsgrad genau zu bewerten. Die Wasserstoffsättigung nach dem ersten Jahr der Injektion ist für jeden Sensitivitätsfall dargestellt. In dieser Abbildung stellt jede Zeile die Simulationsergebnisse für den jeweiligen Parameter in den in Tabelle 10 festgelegten Minimal- und Maximalfällen dar.





Abbildung 11: Querschnittsansicht der Wasserstoffsättigung nach 1 Jahr Injektion im homogenen 2D-Konzeptmodellen

#### 4.1.1 Mächtigkeit

Die Mächtigkeit der unterirdischen Reservoire kann von einigen Metern bis zu Hunderten von Metern variieren. Daher sollten die Auswirkungen der Mächtigkeit der Lagerstätte auf den Durchmischungsgrad untersucht werden.

Um Szenarien zu definieren, wird das gleiche Wasserstoffvolumen in die Lagerstätten mit einer Mächtigkeit zwischen 20 und 450 m injiziert. Da das injizierte Gasvolumen konstant ist, nicht aber das Volumen der Lagerstätte, ist ein geringerer Druckanstieg in der mächtigeren Lagerstätte zu beobachten. Dieser Druckunterschied kann die Schwankungen bei den Mischungsgraden rechtfertigen. Außerdem hat der Druck einen direkten Einfluss auf das Gasvolumen und damit auf die Gasdichte. Die Simulationsergebnisse für fünf verschiedene Fälle mit unterschiedlicher Mächtigkeit sind in Abbildung 12 dargestellt. In dieser Abbildung werden die Mischungsgrade in verschiedenen Zeitschritten verfolgt und für jeden Sensitivitätsfall in separaten Farben dargestellt.



Abbildung 12: Einfluss der Lagerstättenmächtigkeit auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Infolgedessen ist der Vermischungsgrad in den mächtigeren Lagerstätten höher als in den dünneren Lagerstätten. Obwohl in den mächtigeren Lagerstätten eine stärkere Gasdurchmischung zu beobachten ist, zeigen die Simulationsergebnisse einen geringen Einfluss der Lagerstättenmächtigkeit auf den Durchmischungsgrad.

#### 4.1.2 Initialdruck des Reservoirs

Um den Einfluss des anfänglichen Lagerstättendrucks auf den Vermischungsgrad zu untersuchen, wurden vier Szenarien für die Injektion einer identischen Wasserstoffmenge bei unterschiedlichem anfänglichen Lagerstättendruck erstellt. Auf der Grundlage des Dichteverhältnisses zwischen Wasserstoff und Methan (Abbildung 4) wird die größte Schwerkraftentmischung und damit die geringste Vermischung bei einem Lagerstättendruck um 200 bar erwartet.

Abbildung 13 veranschaulicht den Einfluss des anfänglichen Lagerstättendrucks auf den Mischungsgrad während der Betriebszeit. Der anfängliche Lagerstättendruck hat einen vernachlässigbaren Einfluss auf den Mischungsgrad. Insgesamt führen Lagerstätten mit niedrigerem Initialdruck zu einer stärkeren Durchmischung des Gases, da das Dichteverhältnis bei niedrigem Druck geringer ist und die Schwerkraftentmischung beeinträchtigt.



Abbildung 13: Einfluss des Initialdrucks der Lagerstätte auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

#### 4.1.3 Porosität

Bei dieser Sensitivität wird die Auswirkung der Porosität bei gleichem Volumen des Reservoirs untersucht. Aufgrund der direkten Beziehung zwischen Porosität und Porenvolumen bedeutet eine geringere Porosität ein kleineres verfügbares Porenvolumen in jedem Rasterblock und somit weniger "Platz" der Fluide im Reservoir.

Vergleicht man die Fälle mit hoher und niedriger Porosität, so kann die gleiche Injektionsrate im Fall mit niedriger Porosität zu einer höheren Gasgeschwindigkeit führen (Abbildung 14). Dementsprechend kann sich der Wasserstoff schneller durch das Kissengas (CH<sub>4</sub>) bewegen, was zu einer höheren Gasdurchmischung und einem höheren Mischungsgrad führt. Außerdem löst der Druckanstieg am Ende der Injektion eine Schwerkraftentmischung aus und behindert die große Gasdurchmischung. Dies kann eine starke Abhängigkeit der dominierenden Mechanismen bei jedem Zeitschritt bedeuten.



Abbildung 14: Einfluss der Porosität der Lagerstätte auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Gasdurchmischung im Falle einer geringeren Porosität deutlich höher ist und die Fließgeschwindigkeit des Gases im Reservoir im Vergleich zum Lagerstättendruck einen größeren Einfluss auf den Durchmischungsgrad hat.

#### 4.1.4 Permeabilität

Die Permeabilität ist ein empfindlicher Parameter, der das Mischungsverhalten von Gas beeinflusst. Bei dieser Sensitivität wird der Einfluss der Permeabilität des Reservoirs auf den Mischungsgrad mit zwei Methoden analysiert.

- Änderung der Permeabilität entweder horizontal oder vertikal (Abbildung 15)
- Gleichzeitige Änderung der vertikalen und horizontalen Permeabilität (daher immer konstantes Permeabilitätsverhältnis von 10, Abbildung 16)



Abbildung 15: Auswirkung der horizontalen (rechts) und vertikalen (rechts) Permeabilität der Lagerstätte auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen



Abbildung 16: Einfluss der Permeabilität der Lagerstätte (konstante Kh/Kv) auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Aus Abbildung 11 ist ersichtlich, dass die Breite der Mischungsregion in der hochpermeablen Lagerstätte aufgrund der stärkeren Schwerkraftentmischung geringer ist. Infolgedessen können Bedingungen mit hoher Permeabilität die Gasdurchmischung potenziell verringern. Die Abbildung 15 und Abbildung 16 zeigen jedoch höhere Mischungsgrade in den Szenarien mit hoher Permeabilität. Die einfache Begründung dafür ist die angewandte Formel zur Beschreibung des Mischungsgrades. Nach dieser Mischungsgraddefinition (Formel 12) steht er in direktem Zusammenhang mit der Anzahl der Rasterblöcke mit einem Wasserstoffmolanteil zwischen 10 und 90 %. Die Anzahl dieser Rasterblöcke ist eine Funktion sowohl der Breite des Mischugszone in der Grenzfläche der Gase. Aus Abbildung 11 geht hervor, dass trotz der geringeren Breite der Mischungszone in der hochpermeablen Lagerstätte die Grenzfläche zwischen den Wasserstoff- und Methangasen im Vergleich zum niedrigpermeablen Fall viel größer ist. Dies ist der Grund dafür, dass der Mischungsgrad im hochpermeablen Fall höher ist.

#### 4.1.5 Neigung

Das untersuchte 2D-Konzeptmodell enthält keine strukturgeologische Komplexität. Der Neigungswinkel der Lagerstätte als wichtiges geologisches Merkmal wird bewertet, um die empfindlichen Kriterien in dieser Studie einzugrenzen. Sechs Fälle mit unterschiedlichen Neigungswinkeln werden auf das Sensitivitätsmodell angewandt, um die Synklinal- und Antiklinal Strukturen wie folgt darzustellen:

- Neigungsänderung: ±5, ±10 und ±20

Im Falle einer Antiklinale mit sog. "positiver Neigung" wird der Injektor in der tiefsten Tiefe der Struktur platziert (Wasserstoffinjektion in der Tiefe). Der Wasserstoff fließt entlang der Neigung nach oben und ist aufgrund seiner extrem geringen Dichte mit dem Phänomen der Gasüberlagerung konfrontiert. Infolgedessen lässt sich ein hoher Vermischungsgrad nachweisen. Bei den Antiklinalen mit "negative Neigung" mit der Injektionsbohrung am höchsten Punkt ist die Vermischung zwischen den Gasen dagegen geringer. Die Injektion von Gasen mit geringerer Dichte in den Top-Bereich des UGS kann zu einer schnelleren gravitativen Entmischung führen (Abbildung 17).



Abbildung 17: Einfluss der Lagerstättenneigung auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Zusammenfassend zeigen die Simulationsergebnisse eine hohe Tendenz zur Gasdurchmischung bei zunehmendem Neigungswinkel. Im Gegensatz zu positiven Inklinationsfällen können in negativen Inklinationsfällen generell geringere Vermischungsgrade auftreten. Der große Unterschied zwischen positiven und negativen Neigungssensitivitätsfällen besteht darin, dass in negativen Neigungsszenarien trotz Erhöhung des negativen Neigungswinkels keine weitere Veränderung des Gasmischungsverhaltens zu erkennen ist (Abbildung 17).

## 4.2 EOS- und Viskositätsmodelle

Wie in Kapitel 2 erörtert, ist die genaue Bestimmung der PVT-Eigenschaften des Gases für die Festlegung präziser Injektions- und Produktionsszenarien zur Vermeidung von Betriebsproblemen unerlässlich. Außerdem hilft sie bei der Bewertung des Gasmischverhaltens und der Zusammensetzung des produzierten Gases. Eigenschaften wie Gasdichten, Gasviskositäten usw. werden mit Hilfe vordefinierter Korrelationen für verschiedene Drücke (isothermer Prozess) berechnet und schließlich eine Vorhersage der PVT-Eigenschaften erstellt.

Die Vorhersage der PVT-Eigenschaften und das Viskositätsmodell des Gemischs im Basisszenario (blaue Punkte) entsprechen dem Peng-Robinson EOS-Modell bzw. der Jossi-Stiel-Thodos-Korrelation. Bei dieser Sensitivität werden zwei verschiedene Ansätze untersucht, und alle Simulationsergebnisse sind in Abbildung 18 dargestellt:

- Wechsel des EOS-Modells von PR zu SRK-Gleichung (grüne Punkte)
- Änderung des Viskositätsmodells von Jossi-Stiel-Thodos auf Pederson-Korrelation (orange Punkte)



Abbildung 18: Einfluss der Zustandsgleichung und des Viskositätsmodells auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Das Mischungsverhalten der Gase entspricht bei beiden Ansätzen weitgehend dem Basisszenario. Daraus ergibt sich, dass die Änderungen der Viskosität und des EOS-Modells vernachlässigbare Auswirkungen auf den Durchmischungsgrad haben. Darüber hinaus ist anzumerken, dass keines dieser EOS-Modelle mit realen Labordaten kalibriert wurde.

## 4.3 Physikalische und numerische Dispersion

Die Berücksichtigung der Dispersion ist entscheidend für ein besseres Verständnis des Gasphasentransports in einem porösen Medium. Darüber hinaus spielt die dispersive Vermischung eine entscheidende Rolle für die Wirksamkeit von mischbaren Flutungen. Eines der Hauptziele dieser Arbeit ist es, das Verständnis für die grundlegenden Mechanismen der Dispersion und Vermischung zu verbessern, insbesondere auf der Ebene des Reservoirs. Zwei wichtige Komponenten der physikalischen Dispersion, die auch als hydrodynamische Dispersion bezeichnet wird, sind mechanische Dispersion und molekulare Diffusion.

Außerdem müssen die Auswirkungen der numerischen Dispersion als Berechnungsfehler analysiert werden. Der Fehler der numerischen Dispersion tritt in den Ergebnissen hauptsächlich aufgrund der zeitlichen und räumlichen Diskretisierung auf und scheint unvermeidbar zu sein. Da die numerische Dispersion einen ähnlichen Einfluss auf das Mischungsverhalten hat, ist es notwendig, die numerische Dispersion auf ein akzeptables Maß zu reduzieren, um die Auswirkungen der physikalischen Dispersion effektiv zu erfassen.

Die Untersuchung der physikalischen Dispersion in dieser Arbeit kann in zwei Hauptschritte unterteilt werden.

- Eliminierung (Minimierung) der numerischen Dispersion
- Einbeziehung der hydrodynamischen Dispersion

Daher liefert diese Arbeit mehrere wichtige Ergebnisse aus numerischen und physikalischen Untersuchungen. An erster Stelle steht die Lösung einer seit langem bestehenden Herausforderung, nämlich wie die numerische Dispersion im Modell im Feldmaßstab beseitigt werden kann. Anschließend kann das Modell den realistischen physikalischen Prozess der dispersiven Mischung explizit erfassen.

#### 4.3.1 Eliminierung (Minimierung) der numerischen Dispersion

Die numerische Streuung ergibt sich aus den Berechnungsfehlern der Konzentrationen am Zellrand auf der Grundlage der Konzentrationen in der Zellmitte. In dieser Arbeit werden zwei praktische Methoden angewendet, um die numerische Streuung im Modell wie folgt zu minimieren:

- Verkleinerung der Rasterzellengröße und der Zeitschrittgröße
- Implementierung des vorgelagerten Gewichtungsschemas zweiter Ordnung

#### 4.3.1.1 Verkleinerung der Rasterzellengröße und der Zeitschrittgröße

Der numerische Dispersionsfehler resultiert hauptsächlich aus der Mittelwertbildung aufgrund der zeitlichen und räumlichen Diskretisierung. Die erste praktische Methode zur Minimierung dieses Fehlers besteht darin, die Größe der Rasterzellen und die Größe der Zeitschritte zu verringern. In diesem Abschnitt werden drei Sensitivitätsszenarien für die numerische Dispersionsreduktion geplant. Wie in Tabelle 11 dargestellt, wird bei der ersten Sensitivität der Vermischungsgrad überwacht, während die Zeitschrittgröße reduziert wird. In der zweiten und dritten Gruppe werden die Rastergrößen in i- und k-Richtung bei der Überwachung des Vermischungsgrades reduziert. In der folgenden Abbildung ist dargestellt, dass i, j, k sind die Einheitsvektoren in den Richtungen x, y bzw. z.



Abbildung 19: Definition der Vektoren i, j und k in den Richtungen x, y, z

Tabelle 11: Diskretisierungsempfindlichkeit Eingabeparameter im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Eigenschaften	Basis	Schritt 1	Schritt 2	Schritt 3	Einheit
Größe des Zeitschritts	30	1	0,1	0,01	Tag(e)
Rastergröße in i	5	2,5	1	-	m
Rastergröße in k	1	0,5	0,2	0,1	m

Für den ersten Sensitivitätsfall (Größe der Zeitschritte) wird das gleiche 2D-Konzeptmodell mit einer anderen Speicherfahrweise initialisiert (Tabelle 6). Auf ein Jahr Wasserstoff-Injektion mit einer konstanten Rate folgt eine einjährige Schließzeit. Bei dieser Analyse liegt das Hauptaugenmerk auf der Minimierung der numerischen Streuung durch Verringerung der Zeitschrittgröße und der Größe der Rasterzellen. Die Verkürzung der Injektions- und Schließzeit ist auf die maximal zulässigen Zeitschritte zurückzuführen, die durch die Lizenz von CMG begrenzt sind. Die Eingabeparameter und die Szenariodefinitionen sind in Tabelle 11 und Tabelle 6 zu finden.

Die maximal zulässigen Zeitschritte bestimmen die größte Einschränkung bei der Verwendung kleinerer Zeitschritte. Diese Sensitivität hat zur Folge, dass eine hohe Rechenzeit und keine signifikante Änderung des Durchmischungsgrads zu beobachten sind. Abbildung 20 zeigt die Veränderung des Durchmischungsgrads über zwei Jahre Betrieb und Überwachung bei Änderung der maximalen Zeitschrittgrößen.



Abbildung 20: Verringerung des Einflusses der Zeitschrittgröße auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Die zweite Gruppe von Sensitivitäten wird auf der Grundlage einer schrittweisen Verkleinerung der Rasterzellengröße in der i-Richtung definiert (Abbildung 21). Die Verkleinerung der Rastergröße in i-Richtung auf unter 1 m führte zu einer erheblichen Verlängerung der Simulationslaufzeit. Wie aus Abbildung 18 hervorgeht, sind die Auswirkungen der Verringerung der Rasterzellengröße in i-Richtung auf 1 m auf die numerische Dispersion und die Gasmischung vernachlässigbar.



Abbildung 21: Auswirkungen der Verringerung der Größe der Rasterzellen in i-Richtung auf den Vermischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Die letzte Sensitivitätsgruppe ist in Übereinstimmung mit der Verringerung der Rasterzellengröße in k-Richtung geplant (Abbildung 22). Die beobachteten Trends können auf die Beziehung zwischen dem Durchmischungsgrad und der Rastergröße in k-Richtung schließen lassen. Da der Effekt der numerischen Dispersion direkt vom Durchmischungsgrad abhängt, kann eine Verkleinerung der Rasterzellengröße in k-Richtung zu einer deutlichen Verringerung der numerischen Dispersion führen. Allerdings ist diese Verringerung der numerischen Dispersion auf eine Rastergröße von weniger als 0,2 m beschränkt, und weitere Verfeinerungen lassen keine wesentlichen Änderungen des Mischungsgrads erkennen. Darüber hinaus kann sich die Berechnungszeit enorm verlängern. Daher wird die geringste numerische Streuung im Sensitivitätsfall mit einer Rasterzellengröße von 5\*1\*0,2 m<sup>3</sup> im Hinblick auf eine angemessene Berechnungszeit beobachtet.



Abbildung 22: Auswirkung der Verringerung der Rasterzellengröße in k-Richtung auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodell

#### 4.3.1.2 Implementierung des vorgelagerten Gewichtungsschemas höherer Ordnung

Die zweite Methode zur Verringerung der Auswirkungen der numerischen Dispersion besteht in der Verwendung von stromaufwärts gelegenen Gewichtungsschemata höherer Ordnung zur numerischen Dispersionskontrolle (Shrivastava et al. 2005). Der Simulator löst die Advektions-Dispersions-Gleichung und ordnet die Konzentration jedes Fluids dem Zentrum der Rasterblöcke zu. Die numerische Dispersion ist definiert als der Fehler, der sich aus der Beschreibung der Fluidkonzentration an den Zellgrenzen auf der Grundlage der Fluidkonzentration in den Zellzentren ergibt. Unter den verschiedenen Methoden wird in dieser Arbeit das sogenannte vorgelagerte Gewichtungsschema höherer Ordnung gewählt, um die numerische Dispersion zu minimieren. Bei dieser Methode werden zusätzliche Rasterpunkte der benachbarten Zellen einbezogen, was eine genauere Berechnung an den Zellgrenzen ermöglicht (Terstappen 2021). Der GEM-Simulator ermöglicht es, diese Methode der numerischen Dispersionskontrolle zusammen mit einem Total Variation Diminishing (TVD)-Flussbegrenzer zu verwenden. Der TVD-Flussbegrenzer verhindert die Erzeugung übermäßiger Oszillationen.



Abbildung 23: Diskretisierung eines linearen Systems mit Blockindizes und Downstream-Richtung (Terstappen 2021)

Wie in Abbildung 24 dargestellt, kann die Aktivierung des TVD-Flussbegrenzers die numerische Dispersion auf ein akzeptables Maß verringern. Das Ergebnis des Vermischungsgrades bei verfeinerten Rasterzellen (k-Richtung bis 0,2 m) ist nahezu analog zu dem Fall mit dem TVD-Flussbegrenzer. Zur Minimierung der numerischen Dispersion ist daher die Verwendung der Berechnungsmethode des Schemas zweiter Ordnung praktisch vorzuziehen. Die große Bedeutung dieser Methode liegt darin, die Simulation zeit- und kosteneffizient zu gestalten, insbesondere bei der Simulation von Reservoirmodellen im Feldmaßstab.



Abbildung 24: Vergleich verschiedener Methoden zur Verringerung der numerischen Dispersion im homogenen 2D-Konzeptmodellen

#### 4.3.2 Einbeziehung der hydrodynamischen Dispersion

Es wird ein schrittweiser Ansatz verfolgt, um alle einflussreichen Kriterien für das Mischungsverhalten von Wasserstoff zu bewerten. Der nächste Schritt nach der Minimierung der numerischen Dispersion im Modell ist die Einbeziehung der hydrodynamischen Dispersion. Im Allgemeinen kann die hydrodynamische Dispersion in mechanische Dispersion und molekulare Diffusion unterteilt werden. Beide Mechanismen werden in den folgenden Abschnitten kurz erörtert und ihre Auswirkungen auf die Gasmischung werden analysiert.

#### 4.3.2.1 Mechanische Dispersion

Wie in Kapitel 2 erörtert, ist die mechanische Dispersion einer der Hauptmechanismen, die für die Gasmischung aufgrund der Fluidströmung in porösen Medien verantwortlich ist. Da das Dispersionsvermögen in porösen Medien in erheblichem Maße durch Heterogenität, Tortuosität und Skalenabhängigkeit gesteuert Gasmischung durch mechanische Dispersion in wird, wird die Abhängigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit und der Strömungsrichtung bestimmt, die für die Verwendung von Längs- und Querdispergiervermögen im Strömungsprozess verantwortlich sind. Die Querdispergierung ist im Allgemeinen um eine oder zwei Größenordnungen geringer als die Längsdispergierung. Um eine unnötige Komplexität der Simulationen zu vermeiden, wird die transversale Dispersivität von der weiteren Sensitivitätsanalyse ausgeschlossen. In diesem Fall werden die longitudinale und die transversale Dispersivität auf 1 m bzw. 0 m festgelegt. Daher bezieht sich die Erwähnung der Dispersivität an dieser Stelle des Berichts nur auf die Dispersivität in Längsrichtung.

Durch die Integration der Dispersivität in das Simulationsmodell stößt das Modell auf numerische Inkonsistenzen, die ein großes Problem darstellen. Der Hauptgrund dafür ist, dass der Gasdurchsatz in der Nähe des Injektors erhöht wird und dementsprechend eine starke Zunahme des dispersiven Prozesses gegenüber der Injektion von mischbarem Gas beobachtet werden kann. Diese Unstimmigkeit lässt sich anhand der Berechnungsdateien als hoher Materialbilanzfehler nachweisen. Es gibt eine Reihe von Methoden, um diesen Fehler abzuschwächen. Eine praktische Berechnungsmethode, die im CMG-Handbuch (GEM 2021) empfohlen wird, ist die Verwendung einer vollständig impliziten Berechnung, die zu einer konsistenteren Berechnung führt. Im Falle der Aktivierung der physikalischen Dispersion muss das

Simulationsmodell nach Eliminierung der numerischen Dispersion implizit ausgeführt werden. Die Umstellung der Berechnungsmethode auf eine vollständig implizite Berechnung kann jedoch zu einem geringfügigen Unterschied im Durchmischungsgrad im Vergleich zum Basisfallmodell führen (keine Integration der Dispersivität). Daher ist es für einen belastbaren Vergleich unerlässlich, das Basisfallmodell mit einer vollständig impliziten Berechnungsmethode durchzuführen, und es kann eine weitere Dispersivität in dieses Modell integriert werden (Abbildung 25). Hier werden die Begriffe, die in der folgenden Grafik zu sehen sind, kurz beschrieben:

- Begriff "Fully Imp.": Um numerische Inkonsistenzen im Simulationsmodell zu vermeiden, läuft das Modell mit einer vollständig impliziten Berechnungsmethode



- Term "Disp.": der Dispersivitätsparameter wird einbezogen (Wert 1 m)

Abbildung 25: Einfluss der mechanischen Dispersion auf den Mischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptmodellen

Aus Abbildung 25 ist ersichtlich, dass die mechanische Dispersion eine wichtige Rolle bei der Vermischung der Gase während der Injektionsphase (bis 24 Monate) spielt. Dennoch kann die Auswirkung der mechanischen Dispersion während der Stillstandsperiode (Anfang des dritten Jahres bis Ende des vierten Jahres) vernachlässigt werden. Wie bereits erläutert, hängt das Auftreten der mechanischen Dispersion von der druckbedingten Strömung ab. Wenn die Injektion gestoppt wird (keine Strömung im Reservoir), kann der Effekt der mechanischen Dispersion daher vernachlässigt werden. Die Diagramme der Mischungsgrade sind speziell für diese Lagerstättenbedingungen. Ausgehend von Formel 5 steht die mechanische Dispersion in einem linearen Verhältnis zur Fließgeschwindigkeit. Folglich können höhere Geschwindigkeiten, die durch höhere Injektionsraten verursacht werden, zu größeren Dispersionswerten und Mischungsgraden führen.

Um die Auswirkung verschiedener Dispersionsparameter auf den Mischungsgrad zu untersuchen, werden vier Sensitivitätsfälle angegeben (Abbildung 26).



Abbildung 26: Einfluss der Dispersivität auf den Durchmischungsgrad im homogenen 2D-Konzeptionsmodell

Wie die Simulationsergebnisse zeigen, führt eine Erhöhung des Dispersitätsparameters zu einer stärkeren Durchmischung der Gase.

In der Literatur gibt es mehrere Methoden zur Schätzung des Diffusionskoeffizienten zwischen Gasen. (Terstappen 2021) gibt einen Wert von 4,46E-05 cm<sup>2</sup>/s für den effektiven Diffusionskoeffizienten zwischen Wasserstoffgas und Methangas an, der auf der Grundlage der Sigmund-Methode berechnet wird. Außerdem zeigen zwei Ansätze von Wilke & Lee und Fuller (Poling et al. 2001) im Allgemeinen zuverlässigere Ergebnisse bei der Berechnung des Diffusionskoeffizienten zwischen den Gasen.

In dieser Arbeit wird die Fuller-Methode (Poling et al. 2001) zur Berechnung des Diffusionskoeffizienten zwischen Wasserstoffgas und Methangas wie folgt verwendet:

Formel 13:

$$D_{AB} = \frac{0.00143 \, T^{1.75}}{PM_{AB}^{(1/2)} \left[ (\Sigma v)_A^{1/3} + (\Sigma v)_B^{1/3} \right]^2} \& M_{AB} = 2 \left[ \left( \frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B} \right) \right]^{-1}$$

wobei:

$D_{AB} =$	Diffusionskoeffizient zwischen Gas A und B (cm <sup>2</sup> /s)
T =	Temperatur (K)
P =	Druck (bar)
$M_A, M_B =$	Molekulargewichte von A und B (g/mol)
$\Sigma v =$	Summe der atomaren Diffusionsvolumina der einzelnen Moleküle

Die Atomdiffusionsvolumina sind der Tabelle von (Poling et al. 2001) entnommen. Der isotherme Diffusionskoeffizient kann für jeden Druck berechnet werden. Der anfängliche Lagerstättendruck in den derzeit definierten Modellen beträgt 130 bar und steigt im Laufe der Betriebszeit durch die Wasserstoffinjektion an. Somit kann der Lagerstättendruck einen höheren Druck erreichen. Um den Diffusionskoeffizienten zu berechnen, muss der mittlere Speicherdruck bestimmt werden, der mit 150 bar angenommen wird. Der Diffusionskoeffizient in Luft bei 150 bar ist gleich 7,33E-03 cm<sup>2</sup>/s. Bei dieser Methode wird davon ausgegangen, dass die Diffusion in der Luft stattfindet. Allerdings darf das Vorhandensein fester Medien (Körner) in dieser Untersuchung nicht vernachlässigt werden. Daher muss der effektive Diffusionskoeffizient

angegeben werden, der normalerweise einen geringeren Wert hat. Auf der Grundlage von Formel 5 können der Diffusionskoeffizient und der effektive Diffusionskoeffizient durch den Term  $\varphi^m$  in Beziehung gesetzt werden. Der Exponent "*m*" steht für den Zementierungsfaktor, der dimensionslos ist. Dieser Faktor wird durch die Porennetzwerke in Kombination der verschiedenen Lithologien verursacht. Basierend auf (Dr. Li Li 2020) liegt die Variation von "*m*" zwischen 1,3 und 5.

Nach Formel 13 wird der  $D_{AB}$ -Parameter für die Gase Methan und Wasserstoff bei 150 bar und 45 °C berechnet und anschließend der effiziente Diffusionskoeffizient für verschiedene Zementationsfaktoren abgeschätzt (Tabelle 12). Höhere Werte des Zementierungsfaktors führen zu kleineren Diffusionskoeffizienten.

Parameter	Wert	Wert	Wert	Einheit
Zementierungsfaktor	2	3	5	-
Porosität	0,2	0,2	0,2	-
Effektive molekulare Diffusion	2,93E-04	5,86E-05	2,34E-06	cm²/s

Tabelle 12: Effektiver molekularer Diffusionswert in Abhängigkeit vom Zementierungsfaktor

Der effektive molekulare Diffusionskoeffizient trägt bei niedrigen Fließgeschwindigkeiten zum Mischungsgrad bei. Aus der Literatur (Terstappen 2021) geht hervor, dass der Anteil der Diffusion bei der Berechnung des Dispersionsterms in Formel 5 unter realen Feldbedingungen mit höheren Durchflussraten normalerweise vernachlässigbar ist. In dieser Arbeit werden zwei verschiedene Ansätze für die weitere Analyse betrachtet:

- Hohe Injektionsrate in den 3D-Modellen: Da die Dispersion bei hoher Strömungsgeschwindigkeit dominiert, ist der Effekt der molekularen Diffusion während der Injektionsphase vernachlässigbar (Terstappen 2021).
- Niedrige Injektionsrate im 2D-Modell: eine extrem langsame Front und ein größerer Einfluss der molekularen Diffusion auf den Mischungsgrad.

In diesem Abschnitt wird eine niedrige Injektionsrate verwendet, die zu einer extrem langsamen Front führt. Der Grund für die Verwendung einer niedrigen Injektionsrate im 2D-Konzeptmodell ist die Untersuchung der Auswirkungen der Diffusion auf den Durchmischungsgrad bei niedrigeren Strömungsgeschwindigkeiten, die in früheren Arbeiten nicht berücksichtigt und nicht untersucht wurden.



Abbildung 27: Auswirkungen der molekularen Diffusion auf das Mischungsverhalten im homogenen 2D-Konzeptmodellen

In dieser Studie können eine niedrigere Fließgeschwindigkeit und eine längere Einspritzdauer die Auswirkungen der molekularen Diffusion auf den Mischungsgrad verstärken (Abbildung 27). Darüber hinaus zeigen niedrigere Injektionsraten und Strömungsgeschwindigkeiten, dass der Einfluss des Diffusionskoeffizienten mit einem Wert von 5,86E-05 cm<sup>2</sup>/s zu einer erheblichen Verbesserung des Mischungsgrades führen kann. Im Gegensatz zu dieser Untersuchung stellt (Terstappen 2021) fest, dass die molekulare Diffusion erst ab Werten in der Größenordnung von 1E-02 cm<sup>2</sup>/s einen signifikanten Einfluss auf das Gasmischverhalten hat.

# 5 Ergebnisse und Diskussion der homogenen und heterogenen 3D-Konzeptmodelle

In diesem Kapitel wird das Mischungsverhalten von Wasserstoff und Methan in den zwei 3-dimensionalen (3D) konzeptionellen Modellen untersucht, um so einen ersten Eindruck vom Einfluss der Heterogenität eines Porenreservoirs zu bekommen. Es werden die Ergebnisse eines homogenen mit einem heterogenen Modell verglichen.

## 5.1 Konzeptionelles homogenes 3D-Modell

Das erste 3D konzeptionelle Modell ist eine Antiklinalstruktur mit homogener Eigenschaftsverteilung (Porosität/Permeabilität) entsprechend den durchschnittlichen Reservoireigenschaften der deutschen UGS (Abschnitt 3.2.2).

Auf der Grundlage des definierten Szenarios wird die Simulation des ersten Injektions-Produktionszyklus für die weitere Berechnung der Wasserstoffrückgewinnungseffizienz verwendet (Abschnitt 3.3.2). In diesem homogenen 3D-Konzeptmodell werden für die weitere Sensitivitätsanalyse vier verschiedene Szenarien festgelegt.

- Produziertes Wasserstoffvolumen in jedem Zyklus
- Reservoir-Eigenschaft (Porosität/Permeabilität)
- Wasserstofflöslichkeit und EOS-Modell
- Physikalische und numerische Dispersion

Das in allen Sensitivitätsanalysen des Abschnitts verwendete Betriebsszenario ist in der Tabelle 8 aufgeführt. Die Einzelheiten der multizyklischen Injektionsproduktion werden in den folgenden Abschnitten ausführlich erörtert.

#### 5.1.1 Produziertes Wasserstoffvolumen in jedem Zyklus (Basisszenario)

Trotz der Tatsache, dass der Lagerstättendruck zu Beginn und am Ende eines jeden Zyklus identisch mit denen der anderen Zyklen ist, variiert die Gaszusammensetzung im Produktionsstrom bei jedem Zyklus. Dies wirft die Frage auf, ob das Arbeitsgasvolumen bei jedem Zyklus unterschiedlich ist. In diesem Zusammenhang wird die normalisierte kumulative Wasserstoffproduktion für jeden Zyklus analysiert. Abbildung 28 veranschaulicht die normalisierte Wasserstoffproduktion für jeden Zyklus. Nach jedem Zyklus ist eine steigende Tendenz des Arbeitsgasvolumens zu beobachten. Durch die Erhöhung der Anzahl der Zyklen wird eine höhere Reinheit des Wasserstoffs im Produktionsstrom erwartet.



Abbildung 28: Vergleich des Arbeitsgasvolumens für jeden einzelnen Zyklus im homogenen 3D-Konzeptmodellen

#### 5.1.2 Lagerstätteneigenschaften (Porosität/Permeabilität)

Zur Bewertung der Wasserstoffspeicherleistung werden die wichtigsten Eigenschaften des Reservoirs, einschließlich Porosität und Permeabilität, ausgewählt. Die Neigung der erzeugten Struktur liegt im Bereich der bestehenden deutschen Erdgas-UGS. Die gewählten Porositäts- und Permeabilitätsbereiche stimmen mit den Labormessungen der Gesteinseigenschaften überein, die an realen Kernproben der Detfurth-Oberbank-Formation vorgenommen wurden. Die Sensitivitätsfälle sind so gewählt, dass sie den Bereich der Porosität und Permeabilität der deutschen UGS wie folgt abdecken:

- Veränderung der Permeabilität: 149, 329, und 800 md
- Änderung der Porosität: 5, 10, 15, 20, 25 %

Abbildung 29 zeigt eine schematische Darstellung der Wasserstoffsättigung während der Injektionsphase im homogenen 3D-Konzeptmodell.



Abbildung 29: Wasserstoffsättigung über der Injektionsphase im homogenen 3D-Konzeptmodell: 3D-Ansicht (links) und Querschnittsansicht (rechts)

Diese Sensitivität ist so geplant, dass die Szenarien alle möglichen Paare von gegebener Porosität und Permeabilität abdecken. Um alle definierten Szenarien vergleichen zu können, ist es wichtig, die Definition der Effizienz der Wasserstoffproduktion wie folgt festzulegen:

#### Formel 14:

 $Effizienz \ der \ Wasserstoff produktion = \frac{Kumulativ \ ausgespeicherter \ Wasserstoff}{Kumulativ \ injizierter \ Wasserstoff}$ 



Abbildung 30: Einfluss der Eigenschaften (Porosität und Permeabilität) auf die Effizienz der Wasserstoffproduktion im homogenen 3D-Konzeptmodell

Die Gesamtergebnisse zeigen, dass die Effizienz der Wasserstoffproduktion durch verbesserte Lagerstätteneigenschaften in Abhängigkeit von der Porositäts-Permeabilitäts-Werten gefördert wird (Abbildung 30). Unter der Annahme gleicher Bedingungen kommt es im Fall mit geringerer Porosität aufgrund der höheren Gasströmungsgeschwindigkeit zu einer stärkeren Gasdurchmischung. Darüber hinaus kann eine höhere Permeabilität die Schwerkraftentmischung deutlich verbessern. Dementsprechend führt eine geringere Gasdurchmischung zu einer höheren Effizienz der Wasserstoffproduktion bei einem ähnlichen Betriebsplan.

#### 5.1.3 Wasserstofflöslichkeit und EOS-Modell

In dieser Sensitivität wird der Einfluss der Wasserstofflöslichkeit in Wasser und der Wasserstoffhysterese untersucht. Die durchschnittliche Wassersättigung der Lagerstätte während der aufeinanderfolgenden Injektions- und Ausspeicherzyklen ist in der Abbildung 31 auf der rechten Seite dargestellt.



Abbildung 31: Durchschnittliche Wassersättigung während der Injektions- und Produktionszyklen im homogenen 3D-Konzeptmodell

#### 5.1.3.1 Wasserstofflöslichkeit

Während der Injektions- und Produktionsphase sind zwei verschiedene Umstände zu erwarten, die die Löslichkeit und Freisetzung von Wasserstoff betreffen. Während der Injektionsphase kann ein Teil des injizierten Wasserstoffs im Formationswasser der Lagerstätte gelöst und schließlich aufgrund des Wasserstofflöslichkeitsmechanismus eingeschlossen werden. Dieser Mechanismus ist in hohem Maße vom Lagerstättendruck und den Löslichkeitsparametern abhängig, wie in Abschnitt 2.1.3 Löslichkeit beschrieben. Während der Produktionsphase kann dennoch ein Teil des gelösten Wasserstoffs durch den Druckabfall aus dem Formationswasser der Lagerstätte freigesetzt werden.

Der Ein- und Ausspeicherzyklus ist in Tabelle 8 beschrieben, und es sind zwei Sensitivitätsfälle geplant, die in der Reservoirsimulation wie folgt umgesetzt werden:

- Sensitivität 1: Löslichkeit aktiv nach dem Modell von Land
- Sensitivität 2: Löslichkeit deaktiviert

Die kumulative Wasserstoffproduktion und der gelöste Wasserstoff in drei Betriebszyklen sind in Abbildung 32 dargestellt. Die Menge des gelösten Wasserstoffs liegt in der Größenordnung von 10E+06 und damit um 2-3 Größenordnungen niedriger als der zurückgewonnene Wasserstoff. Aufgrund der geringen Löslichkeit des Wasserstoffs und der geringen Wassersättigung an der Injektionsstelle ist die durch den Löslichkeitseffekt eingeschlossene Wasserstoffmenge in diesem Modell nicht signifikant.



Abbildung 32: Kumulative Wasserstoffproduktion (links) und Menge des im Wasser gelösten Wasserstoffs während der Injektions- und Produktionszyklen (rechts) im homogenen 3D-Konzeptmodell

#### 5.1.3.2 EOS-Modell

In diesem Abschnitt werden die Auswirkungen der Zustandsgleichung auf die Produktionseffizienz anhand der folgenden Sensitivitätsfälle aufgezeigt:

- Sensitivität 1: PR-EOS wird für das Basisfallmodell verwendet
- Sensitivität 2: SRK-EOS zur Modellierung der PVT der vorhandenen Gase

Der Ein- und Ausspeicherplan ist in Tabelle 8 definiert.



Abbildung 33: Auswirkungen des EOS-Modells auf die Wasserstofferzeugung im homogenen 3D-Konzeptmodell

Abbildung 33 veranschaulicht die Auswirkungen verschiedener EOS auf die Wasserstoffgewinnung im Ausspeichergasstrom. Auf der Grundlage dieser Ergebnisse sagt die PR-Zustandsgleichung eine höhere Wasserstoffproduktionsleistung voraus. Darüber hinaus ist anzumerken, dass keines dieser EOS-Modelle mit realen Labordaten kalibriert wurde.

#### 5.1.4 Physikalische und numerische Streuung

Um das Verständnis des Dispersions-/Diffusionsprozesses und seines Einflusses auf die Gasmischung zu verbessern, werden die Dispersions-/Diffusionsmechanismen für eine weitere Bewertung analysiert. Wie in Abschnitt 4.3.1 erläutert, kann die numerische Dispersion durch die Implementierung eines stromaufwärts gerichteten Gewichtungsschemas höherer Ordnung minimiert werden. In diesem Abschnitt wird die gleiche Methode verwendet, um die numerische Dispersion zu eliminieren, und anschließend können die Auswirkungen der mechanischen Dispersion und der molekularen Diffusion getrennt überwacht werden.

Die Simulation wird nach dem angegebenen Betriebsplan durchgeführt (Tabelle 8), und die Sensitivitätsfälle werden in zwei Gruppen definiert (Tabelle 13). Der Wasserstoff wird am Scheitelpunkt des Reservoirs mit 1E+06 m<sup>3</sup>/d zwei Monate lang injiziert, was zu hohen Strömungsgeschwindigkeiten von einigen Metern pro Tag führt. Dann kann der Durchmischungsgrad am Ende des zweiten Monats für jedes Szenario berechnet werden.

- Sensitivität 1: Nur Kopplung der Dispersivität mit dem Reservoir-Modell

Die numerische Dispersion wird im Basisfallmodell minimiert. Dann wird der Dispersionswert im Basisfallmodell schrittweise erhöht und der Durchmischungsgrad am Ende des zweiten Monats überwacht. Aus den Ergebnissen in Abbildung 34 (linke Seite) geht hervor, dass die Dispersivität eine nahezu lineare Beziehung zum Durchmischungsgrad aufweist.

- Sensitivität 2: Diffusionskopplung an das Reservoirmodell (Dispersivität ist bereits hinzugefügt)

Bei dieser Sensitivität werden zwei Dispersivitätswerte (1 und 10 m) berücksichtigt (Abbildung 34 auf der rechten Seite). Die unterschiedliche Reihenfolge der molekularen Diffusionskoeffizienten kann bei der Ermittlung des am stärksten zum Mischungsgrad beitragenden Diffusionskoeffizienten helfen, wenn die mechanische Dispersion in das Reservoirmodell integriert wird.

Set	et Fall Diffusionskoeffizient (cm²/s)		Dispersität (m)
	Fall 1	0	0
	Fall 2	0	1
Sensitivität 1	Fall 3	0	2
	Fall 4	0	4
	Fall 5	0	6
	Fall 6	0	8
	Fall 1	5,86E-05	1
	Fall 2	5,86E-04	1
	Fall 3	5,86E-03	1
Sonoitivität 2	Fall 4	5,86E-02	1
Sensitivitat 2	Fall 5	5,86E-05	10
	Fall 6	5,86E-04	10
	Fall 7	5,86E-03	10
	Fall 8	5,86E-02	10

Tabelle 13:	Hydrodynamische	Ausbreitungsempfindlichkeitsfälle	im homogenen 3D	-Konzeptmodell
101001101101		geenip maner terter and		

Auf der Grundlage von Formel 5 wird die gesamte hydrodynamische Dispersion berechnet, indem die mechanische Dispersion und die molekulare Diffusion addiert werden.

Die Strömungsgeschwindigkeit ist eine Funktion der Entfernung vom Injektor. Folglich kann die Variation der Strömungsgeschwindigkeit in jeder Rasterzelle ein Indikator dafür sein, welche hydrodynamischen Dispersionsfaktoren - mechanische Dispersion oder molekulare Diffusion - dominanter sind. Der Anteil der Dispersionsparameter an der Entwicklung der Injektionsfront ist der Kontrollfaktor für die Gasmischung, die in dieser Sensitivität nach zwei Monaten der Injektion untersucht wird.



Abbildung 34: Einfluss der Dispersion auf den Mischungsgrad (links) und Auswirkung der Diffusion auf den Mischungsgrad bei unterschiedlicher Dispersion im homogenen 3D-Konzeptmodell

Die Simulationsergebnisse in der Abbildung 34 auf der rechten Seite zeigen, dass der Einfluss eines niedrigeren molekularen Diffusionskoeffizienten (5,86E-05 und 5,86E-04 cm<sup>2</sup>/s) vernachlässigbar ist, wenn man einen Dispersionswert von 1 m annimmt. Dieses Ergebnis lässt sich durch die Dominanz der mechanischen Dispersion im hydrodynamischen Dispersionsmechanismus rechtfertigen. Der Beitrag der molekularen Diffusion wird ab 5,86E-03 cm<sup>2</sup>/s beträchtlicher. Genauer gesagt, kann der Gasmischungsgrad an der Einspritzfront ab diesem molekularen Diffusionskoeffizienten nach zwei Monaten ansteigen. In der zweiten Sensitivitätsstudie wird die Auswirkung des molekularen Diffusionskoeffizienten auf den Durchmischungsgrad unter der Annahme eines Dispersitätswertes von 10 m analysiert. In diesem Fall beginnt die schrittweise Zunahme der molekularen Diffusion den Durchmischungsgrad ab 5,86E-02 cm<sup>2</sup>/s zu beeinflussen.

## 5.2 3D-Konzeptionsmodell (Heterogenität)

In diesem Abschnitt wird der Wasserstoffspeicherprozess in einem heterogenen Lagerstättenmodell getestet. Anhand der Heterogenitätsverteilung (Abschnitt 3.2.3) und der Injektivitätsprüfung des aktuellen Modells werden zwei Lagerstättenschichten für weitere Untersuchungen ausgewählt:

- Sensitivität 1: Detfurth Oberbank and Unterbank
- Sensitivität 2: Volpriehausen-Sandstein

In Abschnitt 3.3.3 wurden Betriebsszenarien festgelegt, um die Sensitivitätsanalyse im heterogenen Modell zu evaluieren. Abbildung 35 ist eine schematische Darstellung des Wasserstoffmolanteils in beiden Schichten.

Obwohl in beiden Lagerstättenschichten eine ähnliche Wasserstoffmenge injiziert wird, ist das Gasverteilungsverhalten nicht nur aufgrund der Heterogenität, sondern auch aufgrund der Lagerstättenmächtigkeit sehr unterschiedlich. Im Falle der Wasserstoffinjektion in die Volpriehausen-Formation kann der Wasserstoff aufgrund des oben offenen Perforationsintervalls seitlich und sogar bis in die obere Schicht von Detfurth fließen.



Abbildung 35: Schematische Darstellung des Wasserstoff-Molanteils am Ende der Injektionszeit in die Detfurth-Formation (links) und die Volpriehausen-Formation (rechts) im heterogenen 3D-Konzeptmodell

Der Sensitivitätsfall in der Volpriehausen-Formation deutet auf eine höhere Reservoirleistung aufgrund der größeren Mächtigkeit und der besseren Reservoireigenschaften, insbesondere der Permeabilität, hin.



Abbildung 36: Druck in der Bohrlochsohle bei Injektion/Produktion im heterogenen 3D-Konzeptmodell

Abbildung 36 zeigt das Verhalten des Drucks in der Bohrlochsohle während der Injektions- und Entnahmezyklen. Wie in dieser Abbildung zu sehen ist, nimmt der Druck in der Volpriehausen-Formation weniger stark ab, als in der Detfurth-Formation.

#### 5.2.1 Effizienz der Wasserstoffproduktion

Das Hauptziel jedes Zyklus der Wasserstoffspeicherung ist eine effiziente Wasserstoffrückgewinnung bei der Ausspeicherung. Um einen Einblick in die Leistung des Speichers zu erhalten, werden die in dieser Sensitivität definierten Szenarien für drei Zyklen aufgestellt und die Effizienz jedes Zyklus wird einzeln ermittelt. Die Ergebnisse sind für die Speicherschichten Detfurth und Volpriehausen in Tabelle 14 und Tabelle 15 zusammengefasst.

In den Tabellen ist die steigende Tendenz der Wasserstoffproduktionsleistung in jedem Zyklus zu erkennen. Der Trend für die Menge des gelösten Wasserstoffs ist jedoch rückläufig. Die Wasserstoffauflösung in der wässrigen Phase wird als Funktion des Wasserstoffpartialdrucks beschrieben, der durch das Henry'sche Gesetz in GEM berechnet wird. Da der Partialdruck in direktem Zusammenhang mit der Löslichkeit steht, kann die Zunahme der Wasserstoffsättigung zu einem Anstieg des Partialdrucks und damit zu einer höheren Löslichkeit des Wasserstoffs führen.

Tabelle 14: Simulationsergebnisse für den 3. Zyklus der Wasserstoffspeicherung in der Detfurth-Speicherschicht im heterogenen 3D-Konzeptmodell

Zyklus	Injiziertes H <sub>2</sub> (Mol)	Produziertes H <sub>2</sub> (Mol)	Gelöstes H <sub>2</sub> , (Mol)	Effizienz (%)
1	1,15E+09	8,40E+08	1,05e+06	72,91
2	1,14E+09	9,12E+08	7,72E+05	80,02
3	1,14E+09	9,45E+08	6,61E+05	82,90

Tabelle 15:Simulationsergebnisse f
ür den 3. Zyklus der Wasserstoffspeicherung in der Volpriehausen- Speicherschicht<br/>im heterogenen 3D-Konzeptmodell

Zyklus	Injiziertes H <sub>2</sub> (Mol)	Produziertes H <sub>2</sub> (Mol)	Gelöstes H <sub>2</sub> , (Mol)	Effizienz (%)
1	1,15E+09	8,39E+08	1,06e+06	72,83
2	1,14E+09	9,07E+08	7,88E+05	79,63
3	1,14E+09	9,40E+08	6,76E+05	82,53

Die Abweichung der Simulationsergebnisse ist in beiden Fällen nicht signifikant. Die etwas höhere Produktionseffizienz in der Detfurth-Formation ist möglicherweise auf die Heterogenität zurückzuführen.

#### 5.2.2 Zusammensetzung der Wasserstoffproduktion

Da verschiedene Wasserstoffanwender unterschiedliche Anforderungen an die Reinheit des Wasserstoffs haben (derzeit werden je nach Sektor Qualitäten zwischen 98 Vol.-%, Grade A, und 99,98 Vol.-%, Grade D erwartet), besteht die Herausforderung in der Kenntnis der Gaszusammensetzung bei der Ausspeicherung und somit der Auslegung der Gasaufbereitung und des Betriebs. Bei der Ausspeicherung kann nicht nur Wasser mitgefördert werden, sondern auch Resterdgas (siehe Mischungsverhalten), das seinerseits aus mehreren Komponenten besteht (Tabelle 7). Zu diesem Zweck wird das vorherige Szenario für drei Zyklen in beiden Lagerstättenschichten wiederholt und die Reinheit des Wasserstoffs in der Produktionsphase bewertet. Wie aus Abbildung 37 hervorgeht, nimmt die Effizienz der Wasserstoffproduktion mit der Produktionsdauer / Zyklen zu. Die Verlängerung des Produktionszeitraums führt jedoch zu einer drastischen Verringerung der Reinheit des produzierten Wasserstoffs.

Die Zusammensetzung des ausgespeicherten Gases besteht hauptsächlich aus Wasserstoff und Methan. Dies bedeutet, dass die Summe der Wasserstoff- und Methananteile im ersten Zyklus mehr als 98 % beträgt. Infolgedessen müssen obertägig eventuell geeignete Erdgas-Wasserstoff-Trennungsverfahren genutzt werden, um die Wasserstoffreinheit zu erhöhen, sollten Anwender / Abnehmer einen höheren Reinheitsgrad als 98 % benötigen.

Im Laufe eines einzelnen Ausspeichervorgangs (hier im Modell 6 Monate) ist die Wasserstoffkonzentration im Ausspeichergas anfangs sehr hoch, jedoch strömt mit fortschreitender Ausspeicherung immer mehr Resterdgas und auch Wasser zur Bohrung, wodurch sich der Wasserstoffanteil verringert.

Dadurch, dass in keinen Zyklen kein Erdgas eingespeichert wird (sondern nur Wasserstoff), wird die absolute Menge des Erdgases im UGS immer kleiner und die Konzentration des Wasserstoffs im ausgespeicherten



Gas wird sich im Laufe weiterer Speicherzyklen immer weiter erhöhen (vgl. Abschnitt 5.1.1). Aufgrund der zeitlichen Limitierung des vorliegenden Projekts wurden hierzu keine Simulationen mehr durchgeführt.

Abbildung 37: Effizienz der Wasserstoffproduktion und Wasserstoffreinheit über den Produktionszeitraum in Detfurth (links) und Volpriehausen (rechts) im heterogenen 3D-Konzeptmodell

Im Allgemeinen können die Effizienz und die Reinheit der Wasserstoffproduktion verbessert werden, indem die Anzahl der Zyklen bis zum Erreichen des maximal zulässigen Lagerstättendrucks erhöht wird.

# 6 Zusammenfassung und Schlussfolgerung

Die wichtigsten Ergebnisse, die bei der Bewertung aller Sensitivitätsfälle in dieser Arbeit erzielt wurden, sind wie folgt:

#### Homogenes 2D-Modell:

Die Modellierungsergebnisse zeigen eine erhebliche Schwerkraftentmischung zwischen Wasserstoff und Methan aufgrund des großen Dichteunterschieds. Dies kann als Verhinderungsfaktor für die Vermischung der Gase genutzt werden, insbesondere im Falle einer Huff-and-Puff-Bohrung, wenn sie sich am Scheitelpunkt der Lagerstätte befindet. Es gibt mehrere Einflussparameter wie Permeabilität und Neigung, die zu einer Schwerkraftentmischung führen. Eine zunehmende Permeabilität führt zu einer mehr Schwerkraftentmischung.

Im Falle einer Injektion in den Top-Bereich der Formation fördert das Gefälle der Struktur die Schwerkraftentmischung: je steiler, desto stärker die Separation. Im Gegensatz dazu kann im umgekehrten Fall eine erhebliche Gasvermischung festgestellt werden. In diesem Fall kann das Wasserstoffgas aufgrund seiner geringeren Dichte nach oben wandern, so dass die Schwerkraftüberlagerung das Hauptproblem darstellt.

Da die mechanische Dispersion als einer der Hauptfaktoren identifiziert wurde, die den Gasmischprozess beeinflussen, muss das Dispersivitätsmodell weiter untersucht werden. Die in GEM verfügbare Option ist die skalenabhängige Dispersivität. Aufgrund der Skalenabhängigkeit der mechanischen Dispersion sind reale Messungen erforderlich und werden für weitere Untersuchungen empfohlen.

Eine weitere große Herausforderung, die sich beim Hinzufügen von Dispersivität zum Reservoir-Modell ergeben kann, ist die Beseitigung der numerischen Dispersion. Die durch die zeitliche und räumliche Diskretisierung verursachte numerische Dispersion kann das Dispersivitätsmodell überbewerten. Zwei Methoden, die in dieser Arbeit verwendet werden, sind die Reduzierung der Gittergröße und der Zeitschritte sowie die Aktivierung des Gewichtungsschemas höherer Ordnung. Die erste Methode kann die Rechenzeit erhöhen, während die zweite Methode in ähnlicher Weise Kosten und Zeit sparen kann.

Die molekulare Diffusion als Konzentrationsfunktion ist ein weiterer grundlegender physikalischer Prozess, der explizit untersucht wurde. Außerdem wird die Diffusion als langsamer Prozess über makroskopische Entfernungen betrachtet. Den Simulationsergebnissen zufolge wird der Anteil der molekularen Diffusion an der Durchmischung der Gase durch die Verwendung niedriger Einspritzraten erhöht. Aufgrund der Erhöhung des Diffusionsanteils an der gesamten physikalischen Dispersion und der realistischen berechneten Werte des Diffusionskoeffizienten (in der Größenordnung von 1E-05 cm<sup>2</sup>/s) bei niedrigen Injektionsraten kann die Diffusion einen erheblichen Einfluss auf das Mischungsverhalten haben.

#### Homogenes 3D-Modell:

Die Auswirkungen der Eigenschaften der Lagerstätte (Porosität und Permeabilität) auf das Mischungsverhalten sind erheblich. Darüber hinaus führen bessere Lagerstätteneigenschaften zu einer höheren Effizienz der Wasserstoffproduktion.

Die Wasserstofflöslichkeit hat in dem homogenen 3D-Modell nur minimale Auswirkungen auf die Effizienz der Wasserstoffproduktion. Dies ist auf die extrem niedrige Wasserstofflöslichkeit in Wasser und die geringe Wassersättigung in der Lagerstätte zurückzuführen.

Der Einfluss der verfügbaren Zustandsgleichungsmodelle auf die Effizienz der Wasserstoffproduktion wird untersucht. Das Szenario, in dem das PR-EOS zur Modellierung des Fluidverhaltens verwendet wurde, zeigte

eine höhere kumulative Wasserstoffproduktion im Vergleich zu dem Fall, in dem das SRK-EOS verwendet wurde. Darüber hinaus ist anzumerken, dass keines dieser EOS-Modelle mit realen Labordaten kalibriert werden.

#### Heterogenes 3D-Modell

Im heterogenen Modell ist die Injektivität und Produktivität in den Volpriehausener Schichten aufgrund der größeren Mächtigkeit und der besseren lokalen Permeabilitätsverteilung besser als in den Detfurth- und Volpriehausen-Formationen, obwohl die Produktionseffizienz nahezu gleich ist.

Die Simulationsergebnisse zeigten, dass die Effizienz der Wasserstofferzeugung in jedem Zyklus höher war, wenn die Wasserstoffspeicherung in der "Detfurth"-Schicht im Vergleich zur "Volpriehausen"-Schicht geplant war.

# 7 Empfehlungen und zukünftige Arbeiten

die dieser Arbeit wurden Auswirkungen der verfügbaren EOS-Modelle in Winprop In (CMG PVT-Simulator) untersucht, um die Gaseigenschaften zu modellieren und das Mischungsverhalten von Gasen vorherzusagen. In der einschlägigen Literatur wird jedoch betont, dass die beste Übereinstimmung bei der Vorhersage von Wasserstoffgaseigenschaften mit dem EOS-Modell GERG-2008 erzielt werden kann. Es stellt sich die Frage, wie groß die Auswirkungen der Verwendung dieses EOS-Modells auf das Mischungsverhalten, die Schwerkraftentmischung und die Effizienz der Wasserstoffproduktion sind. Es wird empfohlen, die gängigen EOS-Modelle mit realen Laborergebnissen zu vergleichen.

In dieser Untersuchung wird die Wirksamkeit von stromaufwärts gelegenen Gewichtungsschemata höherer Ordnung zur Beseitigung der numerischen Dispersion bewertet. Das Schema zweiter Ordnung wird zusammen mit der Aktivierung des Total Variation Diminishing (TVD)-Flussbegrenzers verwendet (Abschnitt 4.3.1.2). Es wird empfohlen, weitere Untersuchungen zu verschiedenen Methoden zur Minimierung der numerischen Dispersion in einer angemessenen Berechnungszeit durchzuführen.

Bei künftigen Arbeiten können die Abstände zwischen den Bohrlöchern und die Optimierung des Bohrmusters bei potenziellen Bohrungen für die Wasserstoffspeicherung untersucht werden. Im Falle der Nutzung bestehender Bohrungen kann die Suche nach optimalen Bohrlochstandorten darauf abzielen, die Effizienz der Wasserstoffproduktion zu maximieren. Darüber hinaus kann die Wirksamkeit von vertikalen oder horizontalen Bohrungen zur Verbesserung der endgültigen Gewinnung bewertet werden.

Die in dieser Studie angewandte Technik ist ein "Huff-and-Puff"-Verfahren, und es ist erforderlich, den Einsatz von Injektor-Produzenten an verschiedenen Standorten zu untersuchen.

Die Simulationen an numerischen 3D-Modellen sollten ausgeweitet und mehrere Injektions-(Stillstands-) Produktionszyklen simuliert werden, um den postulierten Effekt der Erhöhung der Wasserstoffproduktionseffizienz bei fortlaufenden Speicherbetrieb zu verifizieren. Dies ist vor dem Hintergrund der Anpassung der Gasaufbereitung von besonderer Bedeutung.

Der Hysterese-Effekt als wichtigster Trapping-Mechanismus kann mit verschiedenen verfügbaren Methoden bewertet werden, um die Wasserstoff-Effizienz zu bewerten und zu vergleichen. Die Bewertung muss auf der Grundlage von Labormesswerten des Kapillardrucks und der relativen Permeabilität im Wasserstoff-Wasser-System erfolgen.

# Literaturverzeichnis

Bellini, Emiliano (2021): Key challenges for underground hydrogen storage. Centre for Geosciences Potsdam.

Cramer, S. D. (1982): The solubility of methane, carbon dioxide, and oxygen in brines from 0 deg to 300 deg c. Report of investigations. Bureau of Mines, Avondale, MD (USA). Avondale Research Center. United States. Available online at https://www.osti.gov/biblio/6535847.

Dr. Li Li (2020): Reactive Transport In The Subsurface. pennsilvania college of earth and mineral sciences. Available online at https://www.e-education.psu.edu/png550/node/840, updated on 2020.

Feldmann, F.; Hagemann, B.; Ganzer, L.; Panfilov, M. (2016): Numerical simulation of hydrodynamic and gas mixing processes in underground hydrogen storages. In *Environmental Earth Sciences* 75 (16), p. 1165. DOI: 10.1007/s12665-016-5948-z.

GEM (2021): CMG. User Manual: Computer Modeling Group Ltd.

Hagemann, B.; Rasoulzadeh, M.; Panfilov, M.; Ganzer, L.; Reitenbach, V. (2014): Hydrogenization of Underground Storage of Natural Gas - Impact of Hydrogen on Biochemical Transformations of Stored Gas. In *2214-4609* 2014 (1), pp. 1–11. DOI: 10.3997/2214-4609.20141878.

Hagemann, Birger (2017): Numerical and Analytical Modeling of Gas Mixing and Bio-Reactive Transport during Underground Hydrogen Storage.

Hassanpouryouzband, Aliakbar; Joonaki, Edris; Edlmann, Katriona; Heinemann, Niklas; Yang, Jinhai (2020): Thermodynamic and transport properties of hydrogen containing streams. In *Scientific Data* 7 (1), p. 222. DOI: 10.1038/s41597-020-0568-6.

Heinemann, Niklas; Alcalde, Juan; Miocic, Johannes M.; Hangx, Suzanne J. T.; Kallmeyer, Jens; Ostertag-Henning, Christian et al. (2021): Enabling large-scale hydrogen storage in porous media – the scientific challenges. In *Energy & Environmental Science* 14 (2), pp. 853–864. DOI: 10.1039/D0EE03536J.

Ho, Clifford K.; Webb, Stephen W. (Eds.) (2006): Gas Transport in Porous Media. Dordrecht: Springer Netherlands.

Jossi, John A.; Stiel, Leonard I.; Thodos, George (1962): The viscosity of pure substances in the dense gaseous and liquid phases. In *Aiche Journal* 8, pp. 59–63.

Li, Yau-Kun; Nghiem, Long X. (1986): Phase equilibria of oil, gas and water/brine mixtures from a cubic equation of state and henry's law. In *Can. J. Chem. Eng.* 64 (3), pp. 486–496. DOI: 10.1002/cjce.5450640319.

Lucia, Marco de; Pilz, Peter; Liebscher, Axel; Kühn, Michael (2015): Measurements of H2 Solubility in Saline Solutions under Reservoir Conditions: Preliminary Results from Project H2STORE. In *Energy Procedia* 76, pp. 487–494. DOI: 10.1016/j.egypro.2015.07.892.

Ma, Jianli; Li, Qi; Kempka, Thomas; Kühn, Michael (2019): Hydromechanical response and impact of gas mixing behavior in subsurface CH<sub>4</sub> Storage with CO<sub>2</sub>-based cushion gas. In *Energy & Fuels* 33, pp. 6527–6541. DOI: 10.1021/acs.energyfuels.9b00518.

Paterson, L. (1983): The implications of fingering in underground hydrogen storage. In *International Journal of Hydrogen Energy* 8 (1), pp. 53–59. DOI: 10.1016/0360-3199(83)90035-6.

Poling, B. E.; Prausnitz, J. M.; O'Connell, J. P. (2001): The Properties of Gases and Liquids: McGraw-Hill (Chemical engineering). Available online at https://books.google.de/books?id=1qXJQgAACAAJ.

Scheidegger, Adrian E. (1957): The Physics of Flow Through Porous Media: University of Toronto Press (Heritage Series). Available online at https://books.google.de/books?id=W7TPAAAAMAAJ.

Schulze-Makuch, Dirk (2005): Longitudinal dispersivity data and implications for scaling behavior. In *Ground water* 43 (3), pp. 443–456. DOI: 10.1111/j.1745-6584.2005.0051.x.

Shiralkar, Gautam S.; Stephenson, Robert E. (1991): A General Formulation for Simulating Physical Dispersion and a New Nine-Point Scheme. In *SPE Res Eng* 6 (01), pp. 115–120. DOI: 10.2118/16975-PA.

Shrivastava, Vijay; Nghiem, L. X.; Moore, R. G.; Okazawa, T. (2005): Modelling Physical Dispersion in Miscible Displacement-Part 1: Theory and the Proposed Numerical Scheme. In *Journal of Canadian Petroleum Technology - J CAN PETROL TECHNOL* 44. DOI: 10.2118/05-05-01.

Tarkowski, Radoslaw (2019): Underground hydrogen storage: Characteristics and prospects. In *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 105, pp. 86–94. DOI: 10.1016/j.rser.2019.01.051.

Tek, M. R. (1989): Underground Storage of Natural Gas: Theory and Practice. With assistance of North Atlantic Treaty Organization. Scientific Affairs Division: Springer Netherlands (E]: [Nato ASI series). Available online at https://books.google.de/books?id=3rOzum3wttEC.

Terstappen, R. J. (2021): ANALYSIS OF MIXING DURING HYDROGEN STORAGE IN GAS RESERVOIRS. Delft University of Technology.

Webb, Stephen W. (2006): Gas Transport Mechanisms. In Clifford K. Ho, Stephen W. Webb (Eds.): Gas Transport in Porous Media. Dordrecht: Springer Netherlands, pp. 5–26. Available online at https://doi.org/10.1007/1-4020-3962-X\_2.

Yoonm, Poong; Thodos, George (1970): Viscosity of nonpolar gaseous mixtures at normal pressures. In *Aiche Journal* 16, pp. 300–304.



• www.dbi-gruppe.de

Scannen Sie den QR-Code, um mehr über die DBI-Gruppe zu erfahren!



info@dbi-gruppe.de

DBI Gas- und Umwelttechnik GmbH Karl-Heine-Straße 109/111 D-04229 Leipzig