# UNDERGROUND SUN.STORAGE

Publizierbarer Endbericht

31. Oktober 2017

Projektnummer: 840705



Programmsteuerung



Underground Sun Storage: Publizierbarer Endbericht 31. Oktober 2017

#### Projektkonsortium



Ausschreibung	e!MISSION.at – 1. Ausschreibung
Projektstart	01.Juli 2013
Projektende	30.Juni 2017
Gesamtprojektdauer (in Monaten)	42 Monate
ProjektnehmerIn (Institution)	RAG
AnsprechpartnerIn	Hr. DI Stephan Bauer
Postadresse	1010 Wien, Schwarzenbergplatz 16
Telefon	0043(0)50724-5377
Fax	0043(0)50724-5383
E-mail	stephan.bauer@rag-austria.at
Website	www.rag-austria.at; www.underground-sun-storage.at

# UNDERGROUND SUN STORAGE

Chemical storage of renewable energy in porous subsurface reservoirs with exemplary testbed

#### AutorInnen:

Rohöl-Aufsuchungs Aktiengesellschaft

AXIOM angewandte Prozesstechnik GesmbH

VERBUND AG

MONTANUNIVERSITÄT LEOBEN

UNIVERSITÄT für Bodenkultur Wien

ENERGIEINSTITUT an der Johannes Kepler Universität Linz

# **1** Inhaltsverzeichnis

1	Inhalts	sverzeichnis	4
2	Kurzfa	issung	8
3	Abridg	ıment	16
4	Einleit	ung	23
5	Geolog	gische, geochemische und geophysikalische Prozesse in V	Vasserstoff-
bea	ufschla	agten Reservoirs	26
5	.1 E	inleitung	26
5	.2 Ir	ntegrität des Deckgebirges	27
	5.2.1	Aufgabenstellung	27
	5.2.2	Inhaltliche Darstellung	28
	5.2.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	29
5	.3 V	eränderung des Verhaltens des Speichergases durch Wasserstoffbeime	engung29
	5.3.1	Einleitung	29
	5.3.2	Aufgabenstellung DBI	30
	5.3.3	Inhaltliche Darstellung DBI	30
	5.3.4	Ergebnisse und Schlussfolgerungen DBI	31
	5.3.5	Aufgabenstellung MUL	34
	5.3.6	Inhaltliche Darstellung MUL	35
	5.3.7	Ergebnisse und Schlussfolgerungen MUL	38
5	.4 T	ransport- und Diffusionsmodellierung an der Montanuniversität	52
	5.4.1	Aufgabenstellung	52
	5.4.2	Inhaltliche Darstellung	52
	5.4.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	54
5	.5 K	ünstliches Lagerstättenwasser	56
	5.5.1	Aufgabenstellung	56
	5.5.2	Inhaltliche Darstellung	56
	5.5.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	56
5	.6 V	eränderung des Lagerstättengesteins (Reservoir Alteration)	59
	5.6.1	Aufgabenstellung	59
	5.6.2	Inhaltliche Darstellung	59
	5.6.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	60
5	.7 G	Seochemische Simulation	65
	5.7.1	Aufgabenstellung	65
	5.7.2	Inhaltliche Darstellung der statischen Simulation RAG	66
	5.7.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen der statischen Simulation RAG	66
	5.7.4	Dynamische Simulation RAG	70
	5.7.5	Inhaltliche Darstellung der Simulationen MUL	70
	5.7.6	Ergebnisse und Schlussfolgerungen MUL	74
5	.8 V	erweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente	75
5	.9 L	iteraturverzeichnis	75

5.1	0 Kc	ntaktdaten	77
6 N	/likrobi	ologische Prozesse in Wasserstoff-beaufschlagten Reservoirs	78
6.1	Au	fgabenstellung	78
6.2	lnł	naltliche Darstellung	78
6	5.2.1	Versuchsaufbau	78
6	5.2.2	Versuchsmaterialien	79
6	5.2.3	Untersuchungsmethoden	80
6	6.2.4	Versuchsablauf	81
6	6.2.5	Mögliche mikrobiologische Umsetzungen bei Wasserstoff-Exposition	84
6.3	Er	gebnisse und Schlussfolgerungen	87
6	5.3.1	Hydrochemische Analysen	87
6	5.3.2	Gasanalysen	89
6	6.3.3	Charakterisierung des mikrobiellen Konsortiums	94
6	6.3.4	Schlussfolgerungen	95
6.4	- Ve	rweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente	96
6.5	Lit	eraturverzeichnis	96
6.6	Kc	ntaktdaten	97
7 N	/lateria	lintegrität in Wasserstoff-beaufschlagten Gasspeicheranlagen	98
7.1	Au	fgabenstellung metallische Werkstoffe	98
7.2	lnł	naltliche Darstellung metallische Werkstoffe	98
7.3	Er	gebnisse und Schlussfolgerungen metallische Werkstoffe	102
7	.3.1	SSRTs	102
7	.3.2	CLTs	105
7	.3.3	Auslagerungstests	105
7.4	Sc	hlussfolgerungen metallische Werkstoffe	106
7.5	Au	fgabenstellung Zement	107
7.6	i Inł	naltliche Darstellung Zement	107
7.7	Er	gebnisse und Schlussfolgerungen Zement	107
7.8	Ve	rweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente	111
7.9	Ko	ntaktdaten	111
8 N	/lembra	antechnologie im Zusammenhang mit Wasserstoffbeimengungen	112
8.1	Au	fgabenstellung	112
8.2	lnł	naltliche Darstellung	113
8.3	Er	gebnisse und Schlussfolgerungen	114
8.4	- Ve	rweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente	117
8.5	Ko	ntaktdaten	118
9 Ir	n-Situ-	Feldversuche	119
9.1	Au	fgabenstellung	119
9.2	Vc	rbereitung, Planung und Errichtung der Versuchsanlage	119
9.3	Ve	rsuchsdurchführung	121
9.4	. Wa	asserstoffbilanzierung	121
9	9.4.1	Ausgangssituation	121
9	.4.2	Wasserstoff Produziert	122
9	.4.3	Wasserstoff Diffundiert	122

0.4	1 Managements of Kanayantiant	100
9.4.4	4 Wasserstoff Collect	123
9.4.:	5 Wassersion Gelosi	.125
9.5	Mikioblologie	125
9.5.	Propertarime Formationswasser vom restreid	123
9.5.4	2 Anderung des mikroblehen Konsoniums im Testield	120
9.5.	Applochemische Resultate des Formationswassers	129
9.5.4	4 Anderung der Lagerstattenparameter	122
9.0	Materialiesis	132
9.6.		102
9.0.4	2 Startie	102
9.6.	3 Elasiomere	.132
9.6.4	4 Sondenintegritat	132
9.7	Wodellierung	124
9.0	Zusammennassung der Ergebnisse	134
9.9	Verweis auf Veröhentlichungen und andere Dokumente	.130
9.10		.130
9.11	Kontaktdaten	.137
10 RISH	koanalyse und Life-Cycle Assessment	.138
10.1	Aufgabenstellung	.138
10.2	Inhaltliche Darstellung	.138
10.2	2.1 Risikoanalyse	.138
10.2	2.2 Life-Cycle Assessment	.140
10.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	.141
10.3	3.1 Risiko-Analyse	.141
Life-	-Cycle Assessment	.148
10.4	Verweis auf Veroffentlichungen und andere Dokumente	.151
10.5	Literaturverzeichnis	.152
10.6 	Kontaktdaten	.154
11 Oko	nomische und rechtliche Analysen	.155
11.1	Aufgabenstellung	.155
11.2	Inhaltliche Darstellung	.155
11.2	2.1 Rechtliche Analysen	.156
11.2	2.2 Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz	.156
11.2	2.3 Ökonomische Bewertung	.157
11.2	2.4 Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas	.158
11.3	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	.158
11.3	8.1 Rechtliche Analysen	.158
11.3	B.2 Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz	.162
11.3	3.3 Ökonomischen Bewertung	.166
11.3	3.4 Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas	.170
11.3	3.5 Zusammenfassung	.174
11.4	Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente	.178
11.5	Literaturverzeichnis	.179
11.6	Kontaktdaten	.180

12	Ausblick und Empfehlungen	181
13	Anhang	183

# 2 Kurzfassung

Der publizierbare Endbericht zum Projekt Underground Sun Storage fasst die wesentlichen Erkenntnisse aus dem Forschungsvorhaben zusammen. Dort wo erforderlich, wird auf weitere Publikationen, die im Zusammenhang mit diesem Projekt entstanden sind, verwiesen. Für Rückfragen und weitere Details werden auch Kontaktpersonen der beteiligten Forschungspartner und die Autoren der jeweiligen Kapitel angeführt.

Das Projekt Underground Sun Storage wurde Mitte 2013 gestartet und Mitte 2017 abgeschlossen. Ziel des Projektes war die Erforschung von großvolumigen und saisonalen Speichermöglichkeiten für erneuerbare Energie in ehemaligen Erdgaslagerstätten in Form von Wasserstoffbeimengungen. Dies wird auch durch den englischen Langtitel des Projektes "Chemical Storage of renewable Energy in porous subsurface Reservoirs with exemplary Testbed" zum Ausdruck gebracht. Das Thema Speicherung erneuerbarer Energie ist eines der Schwerpunktthemen des österreichischen Klima und Energiefonds.

Das Projekt war in zwei Phasen unterteilt. Phase I umfasste Grundlagenuntersuchungen mit dem Ziel, die Umsetzbarkeit eines Feldversuchs zu klären. Dabei galt es insbesondere die äußere Integrität eines Untertagegasspeichers nachzuweisen, dass durch Wasserstoffbeimengungen von 10 Prozent nicht geschmälert wird. Phase II beinhaltete die Planung, Genehmigung, Errichtung und den Betrieb einer Feldversuchsanlage an einer kleinen isolierten Erdgas-Lagerstätte im Raum Vöcklabruck/Österreich. Die Arbeiten wurden anhand der geologischen Situation im Voralpengebiet (Molassezone) durchgeführt und berücksichtigten die technischen Gegebenheiten bei kommerziellen Untertagegasspeichern (UGS) der Rohöl-Aufsuchungs AG (RAG). Wichtig war es, erstmals praktische und interdisziplinäre Erkenntnisse zum Thema Wasserstoff in Porenspeichern zu gewinnen und diese auch durch einen Feldversuch zu untermauern.

Das Projekt wurde von der RAG initiiert und wurde gemeinsam mit den Partnern Montanuniversität Leoben, Universität für Bodenkultur - Department IFA Tulln (BOKU; IFA-Tulln), Axiom Angewandte Prozesstechnik GmbH, Energieinstitut an der JKU Linz und Verbund AG und mit Unterstützung aus Fördermitteln des österreichischen Klima- und Energiefonds umgesetzt.

In Summe wurden 10 Arbeitspakete definiert. Zur besseren Lesbarkeit erfolgt hier jedoch eine thematische Gliederung. Insbesondere waren die Themen Geochemie, Geophysik, Mikrobiologie und Werkstoffwissenschaften adressiert. Bei der Durchführung des Feldversuches selbst galt es, diesen im bestehenden Rechtsrahmen zu verankern sowie die lagerstättentechnischen und verfahrenstechnischen Aufgabenstellungen zu lösen. Ziel dabei war es, über einen vollen Speicherzyklus eine rund 10-prozentige Wasserstoffbeimischung zu beobachten und zu bilanzieren.

Abgerundet wurden die Forschung durch ein Risk Assessment, ein Life-Cycle Assessment sowie der Untersuchung von ökonomischen und rechtlichen Rahmenbedingungen.

#### Geologische, geochemische und geophysikalische Prozesse in Wasserstoffbeaufschlagten Reservoirs

Da Wasserstoff als sehr reaktiv angesehen wird, ist Forschung im Bereich der Geochemie und Geophysik für das Projekt entscheidend. Deswegen wurde in mehreren Laborversuchen erforscht, ob Wasserstoff generell die Integrität der Speicherformation bzw. der umgebenden Deckschichten beeinflusst. Außerdem wurde in einigen Laborversuchen der Frage nachgegangen, ob ein wasserstoffhaltiges Gas in der Lagerstätte ein anderes physikalisches Verhalten zeigt als reines Erdgas. Aufbauend auf diese Laborexperimente wurden dann geologische, geochemische und dynamische Simulationsmodelle entwickelt, die versuchten gewonnen Ergebnisse nachzustellen die im Labor und Aussagen über Langzeitauswirkungen und die Beeinflussung umgebender Formationen zu geben. Die für die geochemischen und dynamischen Laborversuche untersuchten Gesteine referenzieren auf die Gasfelder der RAG in der oberösterreichischen Molassezone

Die Bewegung des Wasserstoffs in der Lagerstätte wurde im Labor anhand von Durchströmversuchen an Gesteinskernen der Molassezone bestimmt. Des Weiteren wurden auch Langstrecken-Durchströmversuche in einer Versuchsanlage bestehend aus drei 7m langen vertikalen Druckreaktoren durchgeführt. Diese waren mit Sand gefüllt, um den Porenraum nachzustellen und wurden mit einem Erdgas-Wasserstoff Gemisch (92 Vol.-% CH<sub>4</sub>, 8 Vol.-% H<sub>2</sub>) beaufschlagt, um statische und dynamische Versuche durchzuführen. Bei den statischen Versuchen sollte überprüft werden, ob eine Entmischung von Wasserstoff und Methan in abgeschlossenen, nahezu isotherm auf 40°C temperierten Reaktoren bei drei unterschiedlichen Drücken (10, 25 und 40 bar) über Zeiträume von 6 bis 12 Monaten möglich ist. Es konnte gezeigt werden, dass innerhalb der Messgenauigkeit des eingesetzten Gaschromatographen (ABB Modell PGC 1000) keine Entmischung nachweisbar ist. Die dynamischen Versuche sollten Erkenntnisse hinsichtlich der Entmischung beider Gase beim Durchströmen einer porösen Schüttung (poröses Gestein) liefern. Im Allgemeinen kann festgestellt werden, dass praktisch kein Geschwindigkeitsunterschied zwischen Methan und Wasserstoff im porösen Raum existiert, in Hinblick auf die Messungenauigkeit ist jedoch keine definitive Antwort möglich. Zu erwähnen ist noch, dass ähnliche Versuche, aber an echten Bohrkernen, im Zuge des Projektes auch am DBI Leipzig durchgeführt wurden. Diese kamen ebenfalls zu dem Ergebnis, dass das Fließverhalten des Wasserstoffes in der Lagerstätte dem von Methan entspricht.

An den Sandsteinen und Wässern der Lagerstätte wurden ebenfalls in temperierten Hochdruckreaktoren Durchströmversuche durchgeführt. Dabei wurde das Material mehrere Monate lang einem CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> Gemisch ausgesetzt und allfällige chemische und physikalische Änderungen beobachtet. Für Gase mit einem Anteil von 25 Vol.-% und 75 Vol.-% Wasserstoff konnte an Sandsteinkernen der Molassezone keine Abweichungen der Permeabilitäten gemessen werden. Auch Dünnschliffe und REM Aufnahmen zeigten keine Veränderungen. Dies bestätigt die Annahmen aus der Literatur, die auch zu der Erkenntnis kamen, dass speziell die niedrigen Temperaturen im Speicher eine schnelle geochemische Reaktion unterbinden.

Die Daten aus den Laborexperimenten dienten als Input für die dynamischen geochemischen Reaktionsmodelle der Montanuniversität Leoben. Um die Bewegung des

Wasserstoffes in der Lagerstätte darzustellen, wurde ein geologisches Transportmodel des Testfeldes mittels Simulationssoftware erstellt. In diesem Model wurden dann auch Diffusionsverluste für verschiedene Szenarien abgeschätzt.

Ein weiterer Abschnitt beschäftigt sich mit geochemischen Reaktionen die aufgrund der Wasserstoffspeicherung zwischen Mineralen – Wasser und dem Gas passieren könnten. Dazu wurde ein Arbeitsprogramm entwickelt, das in mehreren Schritten die Langzeiteffekte sowie den zeitlichen Einfluss der Kinetik auf die möglichen Reaktionen voraussagt.

Die Resultate für die chemische Simulation zeigen, dass für die Dauer der Wasserstoffspeicherung keinerlei signifikante Reaktionen stattfinden. Im Transportmodel jedoch konnte für gewisse Szenarien ein Verlust von Wasserstoff durch Diffusion und Wasserlösung festgestellt werden. Somit sollte in zukünftigen Arbeiten ein verstärkter Fokus auf diese Punkte gelegt werden.

#### Mikrobiologische Untersuchungen

Die Aufgabe der Universität für Bodenkultur Wien im Forschungsvorhaben Underground Sun Storage umfasste die Charakterisierung von mikrobiologisch induzierten Transformationsprozessen in Wasserstoff exponierten Gasspeichern. Dazu wurden am IFA-Tulln physikalisch-chemische Bedingungen des Testfeldes in Hochdruck-Bioreaktoren simuliert (siehe Kapitel 6). Bohrkerne, die eine dem Testfeld vergleichbare mineralogischpetrologische Zusammensetzung aufwiesen, wurden in die Reaktoren eingebracht, mit Formationswasser aus dem Testfeld inokuliert und bei 47 bar Überdruck und einer Temperatur von 45°C inkubiert. Nach der Inokulationsphase wurden die Hochdruck-Bioreaktoren mit einem Gemisch aus Wasserstoff (4-10 Vol.-%), Kohlendioxid (0,3-2,5 Vol.-%) und Methan (87,5-95,7 Vol.-%) beaufschlagt. Zur Erfassung eines eventuellen abiotischen Wasserstoffverbrauchs wurden zwei von zehn Reaktoren mit Gamma-Strahlung entkeimt. Die hydrochemischen Eigenschaften der Reaktor-Fluide wurden vor Start der Gasphase (Einleitung von H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>) und nach ca. 180 Tagen bei Öffnung der Reaktoren bestimmt. Zu den gleichen Zeitpunkten wurden auch die mikrobiellen Konsortien auf Basis einer DNA Sequenzierung charakterisiert. Während des Laborversuches erfolgte ein Monitoring des Gehalts der eingebrachten Gaskomponenten (H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>) sowie eine Druck- und Temperatur-Aufzeichnung. Ausgewählte Reaktoren wurden bei Feststellung einer vollständigen Wasserstoffzehrung erneut mit einer Wasserstoff enthaltenden Gasmischung beaufschlagt. Die so im Laborversuch gewonnenen Erkenntnisse zu mikrobiologischen Transformationsprozessen dienten als Grundlage für den Testfeldversuch der Wasserstoff Einspeicherung. Begleitend zum Testfeldversuch (siehe Kapitel 9) erfolgten mehrere Probenahmen von Formationswasser, um Änderungen des mikrobiologischen Konsortiums sowie der hydrochemischen Eigenschaften im Testfeld zu erfassen.

#### Materialintegrität in Wasserstoff-beaufschlagten Gasspeicheranlagen

Die chemomechanische Beständigkeit der im Untergrundgasspeicher (UGS) verwendeten Stahlsorten L80, P110, 42CrMo4, L360, P235, J55 und K55 gegenüber einem Angriff durch gasförmigen Wasserstoff bis zu einem  $H_2$ -Partialdruck von 10 bar, wurde mit Hilfe von Langsamzugversuchen und Tests unter konstanter Last untersucht. Es wurde ein Versuchsplan festgelegt, welcher eine Differenzierung der Einflüsse von Wasserstoff und

anderer, während des Betriebs eines UGS theoretisch möglichen, Komponenten im Angriffsmedium auf die mechanischen Werkstoffeigenschaften ermöglicht. Zusätzlich wurden vorgespannte Stahlproben für ein Jahr im UGS ausgelagert. An den ausgelagerten Proben wurden keine Brüche festgestellt.

Insgesamt unterstützen die Ergebnisse aller durchgeführten Versuche die Annahme, dass es unter den gewählten Versuchsbedingungen zu keiner zusätzlichen Versprödung durch die Einwirkung von gasförmigem Wasserstoff kommt.

Im Zuge des ca. 10 Monate dauernden Feldtests wurden auch die Elastomere NBR 80, HNBR 80, Viton 90, Packer Sealing 90, Packer Sealing 70, Fluorcarbon, HNBR, FPM 90 sowie ein O-Ring Teilstück dem wasserstoffhaltigen Gasgemisch ausgesetzt. Der optische Zustand sowie die Massen und Volumina der Elastomere wurden vor und nach der Auslagerung untersucht. Bis auf den Werkstoff HNBR, welcher eine geringe Massen- und Volumszunahme zeigte, konnten an den untersuchten Elastomeren keine signifikanten optischen, gravimetrischen und volumetrischen Veränderungen festgestellt werden.

Zusätzlich wurden Zemente untersucht, da diese ein essentieller Bestandteil der Sondenkomplettierung sind, welche die Lagerstätte gegenüber der Umgebung und der Oberfläche abdichten. Es konnte gezeigt werden, das dieser gegenüber Wasserstoffmigration genau so dicht ist, wie gegenüber Methanmigration. Auch kommt es zu keiner Veränderung der Struktur oder Dichte durch den Kontakt mit Wasserstoff.

#### Membrantechnologie in Zusammenhang mit Wasserstoffbeimengungen

Axiom angewandte Prozeßtechnik GmbH entwickelte im Rahmen des Forschungsprojektes Underground Sun Storage ein Membran-Gaspermeationsverfahren für die Abtrennung und Anpassung der Wasserstoffkonzentration in Wasserstoff-Erdgas-Mischungen.

Für die Zwecke der Durchführung eines Feldexperiments wurde eine experimentelle Pilotanlage mit einem nominalen Feedgasdurchsatz von 400 Nm<sup>3</sup>/h konstruiert. Die Anlage wurde anschließend am Standort des Feldversuches der RAG in Oberösterreich während einer Gasausspeicherphase betrieben.

Das Feldexperiment bestätigte die Funktionalität des entwickelten Membransystems für die Wasserstoffabtrennung, in dem der Wasserstoffgehalt kontinuierlich und bei unterschiedlichen Prozessbedingungen zwischen 2% und 9% (v/v) im ausgespeicherten Gas eingestellt werden konnte.

Darüber hinaus konnten im Zuge des Feldexperimentes die Vorteile der Membran-Gasseparation bestätigt werden: die hohe Zuverlässigkeit, die hohe Energieeffizienz, die hohe Prozesssicherheit und der niedrige Footprint.

#### In-Situ Feldversuche

Integraler Bestandteil des Projektes war die Durchführung von Feldversuchen an einer kleinen isolierten Lagerstätte mit gegenüber den kommerziellen Speichern der RAG vergleichbaren Eigenschaften. Die ausgewählte Lagerstätte liegt im Raum Vöcklabruck/Oberösterreich. An diesem Standort wurde eine Versuchsanlage geplant, behördlich genehmigt, errichtet und betrieben.

Die tatsächliche Durchführung eines Feldversuches bei dem Wasserstoff zu Erdgas beigemengt und in den Untergrund eingebracht wurde ist einzigartig.

Dabei wurde in einem intensiven Screening die aufgrund ihrer Parameter aber auch Zugänglichkeit geeignetste Lagerstätte für einen derartigen Feldversuch ausgewählt. Parallel zu den Laborversuchen wurden zu Beginn auch Untersuchungen an der Lagerstätte selbst vorgenommen, um die Ausgangssituation der Lagerstätte zu dokumentieren und eine Vergleichsbasis für die Auswertung des Feldversuches zu haben. Diese Vorarbeiten konnten zufriedenstellend abgeschlossen werden, sodass nach dem Aufbau der Anlage im April 2016 mit der Einspeicherung des Wasserstoff Erdgasgemisches begonnen werden konnte. Die Einspeicherung der insgesamt 1,22 Mio.Nm<sup>3</sup> erfolgte bis Anfang Juli 2016 und nach einer dreimonatigen Einschlusszeit wurde ab Oktober 2016 bis Mitte Jänner 2017 das Gas wieder entnommen. Während dieser Zeit wurde ein umfassendes Messprogramm durchgeführt, das eventuelle Änderungen in der Lagerstätte schnell aufgezeigt hätte. Es traten in der gesamten Betriebszeit keinerlei wasserstoffspezifischen Probleme auf. Eine finale Bilanzierung der einund ausgebrachten Volumina zeigte, dass 82 % des eingebrachten Wasserstoffes wiedergewonnen werden konnten. Die restlichen 18% verteilen sich auf Diffusion, Lösung und Konversion, sind jedoch keineswegs lagerstättenschädlich und treten bis auf Konversion vermutlich nur bis zum Erreichen eines neuen Sättigungsgleichgewichtes auf. Zu diesem Punkt besteht jedoch noch Forschungsbedarf. Auch an den in der Anlage verwendeten Materialien und Installationen wurden keine Schäden festgestellt. Somit konnte im Feldversuch nachgewiesen werden, dass eine Speicherung von Erdgas unter der Beimengung von 10 Vol.-% Wasserstoff in den UGS Anlagen der RAG möglich ist.

#### Risikoanalyse und Life-Cycle Assessment

Es erfolgte eine Risikobeurteilung nach internationalen Richtlinien. Dabei wurden mögliche Gefahren der Untertage-Wasserstoffspeicherung, wie auch eine Lebenszyklusanalyse der Umweltauswirkungen von realisierbaren Szenarien der Wasserstoffspeicherung ausgearbeitet.

#### Risiko Assessment

Die Aufgabenstellung des Risiko Assessment berücksichtigte die Identifikation von Risiken und Sicherheitsaspekten der Untertage-Wasserstoffspeicherung in einem Porenspeicher, mit Ausrichtung auf zukünftige Unternehmungen dieser Art. Das Ergebnis mündete in einer Aufstellung der identifizierten Risiken und Sicherheitsaspekte der in dem betrachteten Projekt angewandten Technologien, sowie in einem verbesserten Modell zur Risikoevaluierung der Untertagespeicherung von Wasserstoff unter Berücksichtigung eines qualitativen und quantitativen Risiko Assessment. Weiters wird dieses Modell durch eine Monte Carlo Simulation gestützt und trägt somit zu einem besseren Verständnis der Auswirkungen kritischer Risiken bei. Mittels der vorliegenden entwickelten Verfahrensweise wurden die gewonnenen Daten des Testbeds verifiziert und tragen somit zu einer generischen Methodologie, für die Evaluierung ähnlicher Projekte, bei.

Das, auf den zur Verfügung gestellten Daten basierende, Ergebnis der Risikobetrachtung lässt für den betrachteten Fall deutlich erkennen, dass die Speicherung von erneuerbarer Energie in Form von Wasserstoffbeimengungen in Erdgasspeicherlagerstätten samt zugehörigen Anlagen die gängigen Risiko-Grenzwerte unterschreitet, und es somit zu keinen signifikanten Risiken bzw. keinen erhöhten Risiken für Mensch und Umwelt kommt.

#### Life-Cycle Assessment

Die ökologische Bewertung ausgewählter Power-to-Gas-Anwendungsfelder, erfolgte auf Basis des Standards ISO 14040:2006f "Umweltmanagement – Ökobilanzierung". In diesem Rahmen erfolgte die softwaregestützte Durchführung der Lebenszyklusanalyse für zwei wirtschaftlich realisierbare Szenarien, deren Ergebnisse in die Risikoanalyse miteinbezogen wurden. Die Wirkungsabschätzung zur Identifikation potentieller Umweltwirkungen erfolgte für neun Kategorien (u.a. Klimawandel, Ozonabbau, Humantoxizität, etc.), wobei Sensitivitätsanalysen für relevante Parameter die Vergleichbarkeit von fossilen und erneuerbaren Energiequellen ermöglichen. Die Wirkungsabschätzung zeigte eindeutig, dass die Energiequelle ausschlaggebend für die ökologischen Auswirkungen der ausgewählten PtG-Anwendungsfelder beiden ist. Innerhalb der Anwendungsfelder wurde die Elektrolyseeinheit als wichtigster Energieverbraucher und deren spezifische Effizienz als kritischer Parameter identifiziert. Zusammenfassend konnten jedoch keine potentiellen Umwelteinwirkungen von Signifikanz für die ausgewählten Anwendungsfelder identifiziert werden. Für die eindeutige Darstellung der Vorteilhaftigkeit und des ökologischen Verbesserungspotentials der PtG-Technologie mit Untergrundspeicherung erneuerbarer Energien bedarf es weiterer Analysen mit Daten über längere Zeiträume und für Anwendungen im industriellen Ausmaß.

#### Ökonomische und rechtliche Analysen

den ökonomischen und rechtlichen Analysen wurden die unterschiedlichen In Nutzungsmöglichkeiten und Anwendungsfelder der Speichertechnologie im Kontext des gesamten Power-to-Gas Systems analysiert. Im Vergleich mit den relevanten Benchmarks einzelner Anwendungsfelder im Energiesystem sind vor allem die Produktion eines erneuerbaren Produkts und die Bereitstellung von negativer Regelenergie aus ökonomischen Gesichtspunkten interessant. Andere einzelne Anwendungsfelder sind für sich alleine betrachtet meist mit hohen Gestehungskosten verbunden und noch weiter von Wettbewerbsfähigkeit einer entfernt. Eine intelligente Kombination einzelner Anwendungsfelder im Sinne eines intelligenten Geschäftsmodells ist auf Basis der durchgeführten Analysen zu empfehlen.

Die volkswirtschaftlichen Effekte der Anwendungsfelder haben gemeinsam, dass sie zu einer Erhöhung des österreichischen Bruttoinlandproduktes führen. Ebenfalls wurde das Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz ermittelt, welches von mehreren Einflussfaktoren, wie geltenden Normen und Richtlinien, H<sub>2</sub>-Verträglichkeit der Komponenten, Gasnetzstruktur und Erdgasdurchfluss abhängt.

Neben den technologischen und wirtschaftlichen Aspekten ist auch die gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas in der Bevölkerung ein wesentlicher Faktor. Um eine positive Wirkung auf die soziale Akzeptanz für Wasserstoffanwendungen zu erreichen, müssen die jeweiligen Zielgruppen identifiziert und die relevanten Einflussfaktoren thematisiert werden.

Die rechtliche Untersuchung beschäftigt sich überwiegend mit der Möglichkeit der (Zwischen-)Speicherung von Wasserstoff und synthetischem Erdgas im Erdgasnetz. Dabei wird zunächst eine Einordnung der Power-to-Gas-Anlage in das strom- und gasseitige

Marktmodell vorgenommen; sodann werden Fragen hinsichtlich der Berechtigung zur Errichtung und zum Betrieb sowie allgemeine berufs- und betriebsanlagenrechtliche Voraussetzungen beleuchtet. Wichtig war auch, die durch den Bezug der Elektrizität sowie allenfalls des Erdgases und der (Wieder-)Einspeisung der Power-to-Gas-Produkte anfallenden Kosten darzulegen. Hinsichtlich der Anwendbarkeit des GWG 2011, das ausschließlich für (Erd-)Gas und biogene Gase gilt, kann durchaus argumentiert werden, netzkompatible Erdgas-Wasserstoff-Gemische sowie synthetisches Erdgas unter den Anwendungsbereich des GWG 2011 zu subsumieren. Gestützt wird diese Annahme durch die ErdgasRL 2009.

Darüber hinaus wird auf Aspekte im Zusammenhang einer möglichen Rückverstromung in einem externen Kraftwerk sowie der Teilnahme einer Power-to-Gas-Anlage am Regelenergiemarkt eingegangen. Eine weitere Rechtsfrage ist mit der Möglichkeit der Untertagespeicherung der Power-to-Gas-Produkte nach dem MinroG verbunden. In diesem Zusammenhang unterfallen das einzubringende reine Erdgas sowie das synthetische Erdgas dem Begriff des Kohlenwasserstoffs. Der reine Wasserstoff gilt hingegen als Stoff. Abschließend wird überblicksartig ausgeführt, ob im Krisenfall nach dem EnLG 2012 auf die Power-to-Gas-Anlage zugegriffen werden darf.

Insgesamt ist auf Basis der rechtlichen und ökonomischen Analysen im Projekt Underground Sun Storage zu konstatieren, dass eine Forcierung der Entwicklung des Systems Power-to-Gas sowohl technologisch als auch regulatorisch sowie aus der Perspektive intelligenter Geschäftsmodelle weiterzuentwickeln ist, um die volkswirtschaftlich und systemisch positiven Beiträge realisieren zu können.

#### Resümee und Ausblick

Erstmals wurden im Rahmen eines interdisziplinären Projektes und unter Einschluss eines Feldversuches an einer realen Gaslagerstätte die Fragestellungen der Wasserstoffspeicherung/beimischung untersucht. Dabei konnte festgestellt werden:

Für die untersuchten geochemischen, geophysikalischen und materialtechnischen Rahmenbedingungen ist keine Beeinträchtigung der Speicherintegrität bei Wasserstoffbeimengungen von 10% bzw. 10 bar Wasserstoffpartialdruck zu erwarten. Bei der erstmaligen Beaufschlagung des Reservoirs mit Wasserstoff wird es zu Initialeffekten kommen. Insbesondere über die Löslichkeit von Wasserstoff im Lagerstättenwasser und mögliche Folgereaktionen sind weitere Untersuchungen angebracht. Darüber hinaus wurde Potential identifiziert, Erdgaslagerstätten als natürliche Reaktoren für die mikrobiologische Methanisierung von Wasserstoff und Kohlendioxid zu nutzen.

Anhand der gewonnenen Erfahrungen mit den unterschiedlichen Untersuchungsmethoden und interdisziplinären Ansätzen kann in weiterer Folge die Übertragbarkeit auf andere Speicherformationen untersucht werden. Dazu wurden die wesentlichen Parameter definiert.

Offene Fragestellungen betreffen noch allfällige betriebliche Auswirkungen im kommerziellen Betrieb, die durch die Veränderung der Zusammensetzung des Speichergases und damit auch des Brennwertes des Speichermediums hervorgerufen werden.

In einem Zeitrahmen von vier Jahren konnte somit sowohl die Integrität hinreichend bestätigt werden, als auch der Feldversuch mit den dazugehörigen Anlagen geplant, errichtet und

betrieben werden. Damit ist es gelungen, nicht nur wertvolle wissenschaftliche Ergebnisse zu erzielen, sondern auch die Leistungsfähigkeit der Gasspeicher in einem erneuerbaren Energien Szenario zu demonstrieren.

Die zuvor angesprochene mikrobielle Methanisierung in Erdgaslagerstätten gab den Ausschlag für das Folgeprojekt Underground Sun Conversion. Neben der Entwicklung einer saisonalen Speicherlösung für erneuerbare Energie kann zugleich erneuerbares Erdgas produziert werden, die bestehende Infrastruktur uneingeschränkt genutzt werden und damit ein nachhaltiger Kohlenstoffkreislauf entstehen. Nähere Infos gibt es unter: www.underground-sun-conversion.at.

## 3 Abridgment

The "Publizierbare Endbericht" for the project Underground Sun Storage sums up the essential findings of this research project. Where it is necessary additional publications will be mentioned. For further details, researchers from the different disciplines will be mentioned with their contact data.

The project was started in 2013 and lasted until 2017. The aim was whether it is possible to store huge amounts of renewable energy in existing subsurface gas storages by using hydrogen generated from renewable electricity. This is shown in the long title of the project which reads:" Chemical storage of renewable Energy in porous subsurface Reservoirs with exemplary Testbed". The issue of storage of renewable energies is a key focus of the Austrian climate and energy fund.

The project was split into two phases one being the basic research with lab tests, literature review and simulation and the second was the planning, building, approval and execution of a field-test facility. In the first phase it was especially important to prove that the overall integrity of the subsurface reservoir is not compromised by the blending of 10% of hydrogen to the natural gas. The laboratory experiments were conducted based on the geological situation in the Austrian molass basin and took into account the technical conditions of RAG's (Rohöl-Aufsuchungs AG) commercial gas storages. With this project it was possible for the first time to gain actual interdisciplinary insight into the storage of hydrogen in a subsurface gas storage with the inclusion of an actual field test.

The project was initiated by RAG and was executed together with high quality partners from universities and the industry. The consortium was made up of RAG, Montanuniversität Leoben, Universität für Bodenkultur – Department IFA Tulln, Axiom Angewandte Prozesstechnik GmbH, Energieinstitut an der JKU Linz und Verbund AG and was publically funded by the Austrian climate and energy fund.

Overall, ten workpackages have been defined. However, for better readability the summary is arranged into connected topics. Of special interest were the topics of geochemistry, geophysics and microbiology as well as material science to get a baseline understanding about possible issues in the subsurface concerning hydrogen. For the field test, it was also important to legally couple the project into the existing law. Additionally several reservoir engineering and process engineering issues needed to be addressed. The overall aim was to show a full storage cycle of a gas mixture with 10% of hydrogen blend. Finally, a Risk Assessment and a Life-Cycle Assessment were carried out and also social, legal and economic aspects of such a technology were analyzed.

# Geological, geochemical and geophysical processes in hydrogen bearing porous subsurface gas reservoirs

Hydrogen is a highly reactive element, which made it a key necessity to investigate geochemical and geophysical aspects for this project. Therefore several laboratory experiments where conducted to determine the influence of hydrogen on the integrity of the reservoir and the surrounding seal rocks. Additionally it was investigated whether hydrogenbearing gases have a different physical behavior in a subsurface reservoir than common natural gas. With this knowledge established, geological and geochemical dynamic

simulation models were developed to rebuild and verify the results from the lab. Once this was done, the models were used to make predictions on long-term influences of hydrogen in the subsurface. The rocks used for the laboratory experiments where all taken from representative cores of the molass basin as this basin contains all of RAG's storage formations.

The movement of hydrogen-bearing gases in the reservoir was determined in the laboratory with the help of flow through experiments on wet reservoir rocks. To see these effects not only on small scale (a typical rock plug is only 3 inches long), but on reservoir scale, additional flow through experiments where done in huge high-pressure reactors at MUL. This 7m long reactors where filled with sand to resemble the pore space of a reservoir. It was then filled with a CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> mixture, (92 Vol.-% CH<sub>4</sub>, 8 Vol.-% H<sub>2</sub>) to conduct static and dynamic experiments. The static experiments where done in order to prove that there is no de-mixing of the gases during the duration of one 6 month and one 12 months storage cycle. (Isotherm conditions with 40°C mean temperature and three different pressures of 10, 25 and 40 bar(g)) It could be shown, that inside the measurement precision of the gas phase chromatograph (ABB Modell PGC 1000) no de-mixing is happening. The dynamic experiments should prove that there is also no de-mixing when gas is flowing through the reservoir due to different viscosities. The results of these experiments are hard to interpret, but generally, it can be seen that there are no differences in the travel speed of hydrogen and methane within a porous media. As the measurement, precision made it difficult to find the exact break through points of both gases these results should be used with care. It should be mentioned that the DBI Leipzig did similar experiments on reservoir plugs. Their interpretation of the experimental results was also that there is no difference in the travel speed of hydrogen and methane in the reservoir.

Using the sandstones and the reservoir water from the molass basin geochemical flow through experiments were also conducted at DBI Leipzig. Here wet reservoir rocks where kept under reservoir conditions and  $CH_4/H_2$  atmosphere for several months. Afterwards the permeability was measured and thin-sections where made and compared to measurements and thin-section of the original rocks. It could be seen, that gases bearing a hydrogen share of 25 Vol.-% and 75 Vol.-% of hydrogen do not cause measurable changes under the physical conditions of the molass basin. This also proved the assumptions of a literature study, which also came to the result that the relative low temperatures of the molass basin would hamper geochemical reactions.

The data generated in the laboratory experiments was used as input for the dynamic geochemical reaction models, which were developed at MUL. To determine the movement of hydrogen in the reservoir a geological transport model of the test-reservoir was developed via simulation software. This model was than further used to appraise the losses of hydrogen due to diffusion into the cushion gas and the cap rock under different reservoir conditions. Another part of the simulation was related to geochemical reactions in the gas, water, solid system. For this a workflow was developed, which in several steps tries to predict the long-term as well as the time related effect of kinetics on geochemical reactions. The results showed that for the duration of the storage no significant reactions happen. The transport

model on the other hand showed that for some scenarios losses of hydrogen due to diffusion and dissolution seem possible. This is why future work should focus on this aspect.

#### **Microbiological Experiments**

In the flagship project Underground Sun Storage the University of Natural Resources and Life Sciences, Vienna was responsible for the characterisation of microbiological transformation processes in hydrogen exposed natural gas reservoirs. Accordingly, the physical-chemical conditions of the test field were simulated in high-pressure bioreactors (see chapter 6). Drilling cores with mineralogical and petrological properties similar to the test field were placed in bioreactors, inoculated with formation water from the test field, and then incubated at 47 bar and 45°C. After the inoculation phase, gas mixtures of hydrogen (4-10 Vol.-%), carbon dioxide (0.3-2.5 Vol.-%) and methane (87.5-95.7 Vol.-%) were introduced into the high pressure bioreactors. For the assessment of a potential abiotic hydrogen depletion, two of ten reactors were sterilized using gamma radiation. The analysis of hydrochemical properties of the reactor fluids as well as the characterization of the microbiological consortia based on DNA sequencing was accomplished before the introduction of gas components (H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>) and upon opening of the reactors after approx. 180 days. During the lab-scale experiment, concentrations of gas components were monitored ( $H_2$ ,  $CO_2$ ,  $CH_4$ ) together with pressure and temperature. Upon total consumption of hydrogen, selected reactors were refilled with a hydrogen containing gas mixture. Knowledge on microbiological transformation processes as gained from the lab scale study was applied to set up the hydrogen storage experiment in the field test. Several samplings of formation water were accomplished in the course of the field test experiment (see chapter 9) to monitor possible changes of hydrochemical properties and to detect shifts in the structure of the microbiological consortium.

# Integrity of steels, cements and elastomers in hydrogen-bearing subsurface gas storages

The chemomechanical resistance of the steel grades L80, P110, 42CrMo4, L360, P235, J55 and K55, which are used in an Underground Gas Storage (UGS), against the attack of gaseous hydrogen up to a hydrogen partial pressure of 10 bar, has been investigated by means of slow strain rate and constant load tests. An experimental plan has been established, which enables a differentiation between the effects of hydrogen and other chemical species in the media, whose existence is theoretically possible during the operation of an UGS, on the mechanical properties of the materials. Pre-strained steel samples have been exposed in the UGS for a duration of one year. No rupture has been observed after field exposure. All investigations have shown that no additional embrittlement of the investigated steel grades is caused by the presence of hydrogen gas under the tested conditions. The elastomeres NBR 80, HNBR 80, Viton 90, Packer Sealing 90, Packer Sealing 70, Fluorcarbon, HNBR und FPM 90 and O-Ring Teilstück also have been exposed in the UGS for one year. Optical conditions, masses and volumina of the elastomeres have been investigated before and after the exposure test. Except HNBR, which has shown very slight mass and volume gain, no significant optical, gravimetric or volumetric differences have been observed.

#### Membrane-Technology in relation to hydrogen inclusion into the natural gas stream

Within the research project Underground Sun Storage the company Axiom angewandte Prozeßtechnik developed a membrane permeation system for the separation of hydrogen and for the adjustment of the hydrogen content in natural gas / hydrogen mixtures.

An experimental pilot plant with the nominal feed gas volume flow of 400 Nm<sup>3</sup>/h has been constructed and operated at field conditions at a gas storage facility of Rohöl-Aufsuchungs AG in the Upper Austria.

The experimental plant proved its functionality and ability to adjust the hydrogen content with the assigned limits of 2 .. 9 % (v/v) in the withdrawn gas from the storage. Furthermore, the field experiment confirmed the advantages of the membrane process: its high reliability, high energy efficiency, high process safety and low footprint.

#### Insitu test-bed facility

An essential part of the project was the execution of a field-test in one of RAG's small gas reservoirs. The reservoir was chosen after a thorough screening process which did not only take reservoir, but also logistic parameters (accessibility) into account. It has similar geological and dynamical parameters as RAG's major gas storage facilities. The test bed facility was planned, approved, built and executed at this location which is near Vöcklabruck in upper Austria.

It has to be noted that this field-test is unique, as it is the first project of it's kind where a hydrogen natural gas mixture is actually injected into a porous gas reservoir. Adding to the lab experiments, several baseline measurements in the reservoir and on the completion of the storage well have been done in order to make sure that any possible changes happening do to the field test could be accounted for. After this preliminary work was done, the approval and the construction of the facility was done and in April 2016 the injection of the hydrogen, natural gas mixture finally started. The injection of 1,22 Mio. Nm<sup>3</sup> took about three months until the beginning of July. Afterwards a three months shut in phase was used to monitor the pressure and temperature behaviour as well as the changes in the gas composition. The gas was then reproduced until mid-January 2017. During all this stages pressure and temperature measurements where done on a continuous basis. Additionally several well tests where executed in order to see any possible changes in the reservoir behaviour. However, during the lifetime of the facility no hydrogen induced issues could be monitored. A final volume balance showed, that 82% of the injected hydrogen could be recovered. The other 18% are accounted for by, diffusion, solubility and conversion. No of this processes is harmful to the reservoir and apart from conversion these effects will only happen until a saturation equilibrium with hydrogen is reached in the reservoir. It is however emphasised to do additional research on this aspects in future research projects. It should be mentioned, that no damage was detected on materials or installations of the facility either. Therefore the field test showed, that the storage of 10 vol. % of hydrogen in a gas mixture is possible for RAG's storage facilities.

#### **Risk and Life-Cycle Assessment**

To determine the risks of subsurface hydrogen storage a risk assessment was done within the official international guidelines. Additionally a life cycle assessment was carried out to determine the effects on the environment as well as to generated business cases for future applications of this technology.

#### Risk Assessment

The risk assessment was carried out to identify all possible and probable risks and safety aspects for the storage of hydrogen in an underground pore storage facility, considering future activities of similar nature. The risk assessment led to display and to list all identified risks and safety aspects of all applied technologies in this project, and further, resulted in an improved model for risk evaluation for the underground storage of hydrogen. This model consists of a quantitative and qualitative risk assessment, and is supplemented by a Monte Carlo simulation, which enables a better understanding of possible repercussions of critical risks. The developed methodology encompasses all available test bed data and thus contributes to the development of a generic evaluation methodology for similar projects.

The, on the provided data based, result of the risk assessment for the assessed use case clearly lines out that the regarded storage of renewable energy as hydrogen admixture to Underground Gas Storage reservoirs will not exceed regulatory limits and thus will not display any significant risks or increased risks for man or environment.

#### Life-Cycle Assessment

The ecological assessment of selected Power-to-Gas applications, which were identified in WP 10, was conducted based on the standards of ISO 14040:2006f "Environmental Management – Life-Cycle Assessment". Therefore the LCA was implemented in assistance of specific LCA software for two economic feasible scenarios, and its results were included in the Risk Assessment. The Impact Assessment to identify potential environmental impacts includes nine categories (a.o. climate change, ozone depletion, human toxicity, etc.) whereby sensitivity analyses for relevant parameters allow comparisons between fossil and renewable energy sources. The Impact Assessment showed clearly that the energy sources are relevant for the environmental impacts of PtG applications. With the fields of application the electrolysis unit was identified as the most relevant energy consumer, and its specific efficiency as the critical parameter. To sum up, no significant potential environmental impacts could be identified for the analysed applications. For a clear statement regarding the benefits and the environmental improvement potential of PtG for subsurface storage of renewables, further analyses including longer time frames and large scale applications are needed.

#### Economic and legal analyzes

Economic and legal analyses deals with different fields of application and possible uses of the storage technology were analysed in the context of the whole power-to-gas system. Compared with relevant benchmarks of individual fields of application in the energy system, especially the production of a renewable product (green hydrogen or methane) and the provision of negative control energy are interesting from an economic point of view. Other individual fields of application, when considered individually, are associated with high production costs and therefore are far away from competitiveness. On basis of the performed analyzes an intelligent combination of individual fields of application in terms of an intelligent business model is recommended. The economic effects of the different fields of application have in common, that they lead to an increase in the gross domestic product in Austria. Further the feed-in potential of hydrogen into the Austrian natural gas grid was determined.

Latter is influenced by different factors such as prevailing standards and guidelines,  $H_2$  compatibility of the components, gas grid structure and natural gas flow.

In addition to the technological and economic aspects, also the social acceptance of powerto-gas in public is an important factor. In order to achieve a positive impact on social acceptance for hydrogen applications, the respective target groups must be identified and the relevant influencing factors addressed.

The legal analysis in the project Underground Sun Storage mainly focusses on the possibility of (intermediate) storage of hydrogen and synthetic natural gas in the natural gas network. In the process, a classification of the power-to-gas plant into the electricity- and gas-market model is carried out. Then, questions concerning authorization regarding erection and operation, as well as general requirements concerning rules of professional conduct and plant permits are dealt with. Furthermore, it was important to describe the costs arising from the purchase of electricity and, if necessary, the natural gas and the (re-)feeding in of the power-to-gas products. Even if the GWG 2011 applies exclusively to natural and biogenic gases, it can be argued that it is compulsory to include grid-compatible natural gas-hydrogen mixtures as well as synthetic natural gas within the scope of the GWG 2011. The Natural Gas Directive 2009 supports this assumption.

Additionally, the analysis of the legal situation deals with aspects regarding possible reconversion in an external power plant as well as the participation of a power-to-gas installation in the balancing energy market, contributing to the (negative) secondary control. A further legal question is the underground storage of the power-to-gas products in accordance with the MinroG. In this context, the pure as well as the synthetic natural gas are subject to the term "hydrocarbons", pure hydrogen on the other hand is classified as "material". Finally, the topic of whether the power-to-gas system may be accessed in the event of a crisis accordance with the EnLG 2012 is touched on.

Based on the legal and economic analyzes in the Underground Sun Storage project it can be stated, that the technology Power-to-Gas has to be further developed on a technological and regulatory point of view and as well as from the perspective of intelligent business models in order to make economically and systemically positive contributions.

#### Outlook

To answer the question whether hydrogen-storage in a real subsurface sandstone reservoir is possible the Underground Sun Storage project was initiated as the first project to address these questions with an interdisciplinary approach and a real world field test.

For the examined geochemical, geophysical and material science test no negative influence on the overall storage integrity, when blending 10% of hydrogen to the natural gas could be found. It was found that during the first hydrogen exposure chemical and physical effects are happening in the reservoir. Especially the hydrogen solubility in reservoir water and the follow up reactions should be part of further investigations. Additionally it was found that there is the potential of using subsurface reservoir as bioreactors for methane generation. This happens because of microbes in the subsurface which can convert hydrogen and carbon dioxide to methane.

Due to the knowledge gained by different experimental approaches and an interdisciplinary working group, it is now possible to transfer this knowledge to other subsurface storages. Certain parameters which have to be looked at have been defined during the project.

There are also still open questions concerning operational issues when upgrading this to a commercial facility. This also concerns using different gas blends which would mean different caloric values instead of a homogenous gas quality.

During four years of research, the storage integrity could be sufficiently proven, and the storage facility was successfully planed and operated. Therefore, it was possible to add an essential scientific insight into the capability of a subsurface gas storage in a renewable energy system.

The before mentioned conversion of hydrogen and carbon dioxide to methane will now be even further developed into a follow up project called "Underground Sun Conversion". Apart from the option of seasonal storage of renewable energy, it should then also be possible to generate renewable methane in the same bio facility. Which makes this even more interesting is the fact that the vast European gas infrastructure could be set to a further sustainable use. Furthermore, a self-sustaining carbon cycle could be installed. For further information, please refer to: www.underground-sun-conversion.at

## 4 Einleitung

Um die globalen Klimaziele, aber auch die nationalen Klimaziele zu erreichen, führt kein Weg am Ausbau der Energiegewinnung aus erneuerbaren Quellen vorbei. Die Energiegewinnung aus Sonne und Windkraft ist volatil und folgt nicht dem Bedarf. Neben Kurzzeitspeichern, wie heute für den Tag-Nacht-Ausgleich und zur Gewährleistung sie bereits der Stromnetzstabilität verwendet werden, sind bei steigendem Ausbau der Stromerzeugung aus erneuerbaren Energieguellen auch großvolumige Speicher erforderlich. Diese müssen in der Lage sein, einen saisonalen Ausgleich der Fluktuation von Energieangebot und Energiebedarf sowie die gewohnte Versorgungssicherheit darzustellen/sicherzustellen. Die nach heutigen Gesichtspunkten einzige Möglichkeit diese Speicher zu realisieren sind chemische Speicher. Dazu wurde in den letzten Jahren die "Power to Gas"- Technologie entwickelt und propagiert. Elektrischer Strom wird dabei in Gas, also einen chemischen Energieträger, umgewandelt.



Quelle: RAG; modifiziert nach STERNER

#### Abbildung 1: Systembild Energiespeicherung durch Power to Gas

Dabei kommen Elektrolyseure zum Einsatz, in denen Strom aus erneuerbaren Energiequellen dazu verwendet wird, Wasser in seine Bestandteile Wasserstoff und Sauerstoff zu spalten. Wasserstoff ist somit der erste und naheliegende chemische speicherbare Energieträger für erneuerbaren Strom. Um weitere Prozessschritte zu vermeiden, wird bereits seit etlichen Jahren geprüft, ob und bis zu welchem Ausmaß Wasserstoff dem Erdgas in der bestehenden Infrastruktur zudosiert werden kann. Ohne Anspruch auf Vollständigkeit seien hier das NaturalHy Projekt, die DVGW Studien "Entwicklung von modularen Konzepten zur Erzeugung, Speicherung und Einspeisung von Wasserstoff und Methan ins Erdgasnetz" (G1-07-10), "Wasserstofftoleranz der Erdgasinfrastruktur inklusive aller assoziierten Anlagen" (G1-02-12) sowie das GERG Project "Admissible Hydrogen Concentrations in Natural Gas Systems" genannt.

Ergebnis all dieser Studien ist, dass eine Wasserstoff Zudosierung über weite Bereiche der Infrastruktur und der Verbraucher bzw. Endgeräte im einstelligen Prozentbereich möglich erscheint, auch wenn das eine oder andere Detail noch zu klären ist. Eine gute graphische Übersicht liefert Abbildung 2.



Quelle: DVGW

#### Abbildung 2: Überblicksmatrix H<sub>2</sub>-Toleranz ausgewählter Elemente im Erdgasnetz

Aus obenstehender Abbildung ist aber auch erkennbar, dass gerade die Untergrundporenspeicher hinsichtlich der Wasserstoffverträglichkeit noch weitgehend unerforscht sind.

Auf Initiative der WEG und einiger Erdgasspeicherbetreiber wurden durch die DGMK Literaturstudien zur Wasserstoffverträglichkeit der Erdgasspeicher beauftragt. Die Ergebnisse liegen in Form der DGMK Forschungsberichte 752 "Einfluss von Wasserstoff auf Untertagegasspeicher" und 756 "Einfluss von Biogas und Wasserstoff auf die Mikrobiologie in Untertagegasspeichern" vor. In diesen Arbeiten wurden alle denkbaren Einflüsse und Prozesse, die von Wasserstoff hervorgerufen werden können, dargestellt und beschrieben.

Parallel dazu hat die RAG das Forschungsprojekt Underground Sun Storage entwickelt und gemeinsam mit den Partnern Montanuniversität Leoben, Universität für Bodenkultur – Department IFA Tulln, Energieinstitut an der JKU Linz, Verbund AG, Axiom- Angewandte Prozesstechnik GesmbH nationale Forschungsförderung in Österreich beantragt. Der österreichische Klima- und Energiefonds hat dieses Projekt im Rahmen des

Energieforschungsprogramms als Leitprojekt gefördert. Im Rahmen des weiteren Projektverlaufes wurden Kooperationen u.a. mit den Unternehmen Nafta und Hychico sowie dem DVGW vereinbart.

Das Projekt Underground Sun Storage wurde Mitte 2013 gestartet und Mitte 2017 abgeschlossen. Ziel des Projektes war die Erforschung von großvolumigen und saisonalen Speichermöglichkeiten für erneuerbare Energie in ehemaligen Erdgaslagerstätten in Form von Wasserstoffbeimengungen. Dies wird auch durch den englischen Langtitel des Projektes "Chemical Storage of renewable Energy in porous subsurface Reservoirs with exemplary Testbed" zum Ausdruck gebracht. Das Thema Speicherung erneuerbarer Energie ist eines der Schwerpunktthemen des österreichischen Klima und Energiefonds.

Das Projekt war in zwei Phasen unterteilt. Phase I umfasste Grundlagenuntersuchungen mit dem Ziel, die Umsetzbarkeit eines Feldversuchs zu klären. Dabei galt es insbesondere nachzuweisen, dass die äußere Integrität eines Speichers durch Wasserstoffbeimengungen von 10 Prozent nicht geschmälert wird. Im Rahmen von gezielten Laborversuchen und Simulationen wurde der Einfluss von Wasserstoff auf die spezifische Situation der RAG Erdgasspeicher geprüft. Phase II beinhaltete die Planung, Genehmigung, Errichtung und den Betrieb einer Feldversuchsanlage an einer kleinen isolierten Erdgas-Lagerstätte im Raum Vöcklabruck/Österreich. Die Arbeiten wurden anhand der geologischen Situation im Voralpengebiet (Molassezone) durchgeführt und berücksichtigten die technischen Gegebenheiten bei kommerziellen Untertagegasspeichern (UGS) der Rohöl-Aufsuchungs AG (RAG). Wichtig war es, erstmals praktische und interdisziplinäre Erkenntnisse zum Thema Wasserstoff in Porenspeichern zu gewinnen und diese auch durch einen Feldversuch zu untermauern.

In Summe wurden 10 Arbeitspakete definiert. Zur besseren Lesbarkeit erfolgt hier jedoch eine thematische Gliederung. Insbesondere waren die Themen Geochemie, Geophysik, Mikrobiologie und Werkstoffwissenschaften adressiert. Bei der Durchführung des Feldversuches selbst galt es, diesen im bestehenden Rechtsrahmen zu verankern sowie die lagerstättentechnischen und verfahrenstechnischen Aufgabenstellungen zu lösen. Ziel dabei war es, über einen vollen Speicherzyklus eine rund 10-prozentige Wasserstoffbeimischung zu beobachten und zu bilanzieren.

Abgerundet wurden die Forschung durch ein Risk Assessment, ein Life-Cycle Assessment sowie der Untersuchung von ökonomischen und rechtlichen Rahmenbedingungen.

In einem Zeitrahmen von vier Jahren konnte sowohl die Integrität hinreichend bestätigt, als auch der Feldversuch mit den dazugehörigen Anlagen geplant, errichtet und betrieben werden. Damit ist es gelungen, nicht nur wertvolle wissenschaftliche Ergebnisse zu erzielen, sondern auch die Leistungsfähigkeit der Gasspeicher in einem erneuerbaren Energien Szenario zu demonstrieren.

Das Projekt wurde von der RAG initiiert und wurde gemeinsam mit den Partnern Montanuniversität Leoben, Universität für Bodenkultur - Department IFA Tulln, Axiom Angewandte Prozesstechnik GmbH, Energieinstitut an der JKU Linz und Verbund AG und mit Unterstützung aus Fördermitteln des österreichischen Klima- und Energiefonds umgesetzt.

# 5 Geologische, geochemische und geophysikalische Prozesse in Wasserstoff-beaufschlagten Reservoirs

## 5.1 Einleitung

Die Rohöl-Aufsuchungs-AG (RAG) arbeitet seit den 1950er Jahren in der Molassezone von Oberösterreich und Salzburg, das ist der Bereich zwischen den Voralpen im Süden und dem Böhmischen Massiv im Norden, an der Aufsuchung von Kohlenwasserstoffen (Erdöl, Erdgas) und ist seit 1980 auch als Erdgas-Speicherbetreiber tätig. Alle Untertage-Erdgasspeicher der RAG befinden sich in ehemals produzierenden Erdgaslagerstätten. Erdöl und Erdgas wird hier aus porösen Sandsteinlagerstätten gefördert, wobei Erdöl stratigraphisch hauptsächlich im Eozän und im Cenoman vorkommt und Erdgas bis in die Schichten des tieferen Miozän (Burdigal, Haller Serie).

In den porösen Gasspeichern der Molassezone sind die Fallenstrukturen mit einer mächtigen gasdichten Tonschicht überdeckt. Die Sandsteinformationen selbst sind dank einer Vielzahl an Kernen mittlerweile hinreichend bekannt und können petrographisch gut beschrieben werden. Die Sandsteine der Haller und Puchkirchner Serie, die sich im Molassebecken befinden, beinhalten einen Großteil der Gaslagerstätten der RAG und damit auch alle Gasspeicher der RAG. Die Temperaturen schwanken je nach Tiefe zwischen 30°C und 80°C mit einer niedrigen Salinität von 14-18.000 ppm und einem pH-Wert zwischen 6 und 8. Für die Laborversuche wurden Werte aus der Hallerserie (seichter und damit kühler und weniger salinar) herangezogen, da schon klar war, dass das Testfeld in diesem Bereich liegen würde. Die Beimengung von Wasserstoff in diesem System stellt eine Änderung dar, die sowohl physikalische als auch chemische Relevanz hat. Zum einen wurde nachgewiesen, dass die für die Dichtheit der Lagerstätte verantwortlichen Tone auch gegenüber Wasserstoff dicht sind. Zum anderen wurde in Durchflussexperimenten getestet, ob es eventuelle chemische Änderungen an den in der Lagerstätte und im Deckgebirge befindlichen Mineralen gibt.

Die Diffusivität von Wasserstoff, im in der Lagerstätte vorhandenen Gas, ist speziell für ausgeförderte Erdgaslagerstätten interessant. Aus der Literatur wird nur von einer geringen Vermischung des Kissengases (in der Lagerstätte vorhandenes Gas) mit dem wasserstoffhaltigen Arbeitsgas (effektiv für die Speicherung verfügbares Gasvolumen) ausgegangen [1] [2]. Trotzdem ist dieser Prozess noch nicht ganz verstanden und bedarf einer genaueren Betrachtung. Dasselbe gilt im Umkehrschluss auch für die Entmischung von Wasserstoff aus dem eingespeicherten Gas. Werden Gasgemische mit einem bestimmten Wasserstoffgehalt eingespeichert, so würde man erwarten, dass die Gasmischung weitgehend stabil bleibt. Käme es in der Lagerstätte jedoch zu einer gravimetrischen Segregierung, so könnten lokal höhere Wasserstoffkonzentrationen in der Lagerstätte entstehen, die dann nicht mehr der Spezifikation und den Integritäts- Überlegungen entsprechen. Insbesondere der dann anliegende höhere Partialdruck des Wasserstoffes könnte in weiterer Folge zu stärkeren Reaktionen mit dem Lagerstättengestein führen. Auch die Integrität der verwendeten Werkstoffe wäre neu zu bewerten. Weiters ist es möglich, dass durch die unterschiedliche Viskosität von Wasserstoff und Erdgas, eine

mobilitätabhängige Segregierung passiert [3]. Dies könnte dann ebenfalls zu den schon erwähnten Problemen führen.

Um diese komplexen Fragestellungen zu beantworten, wurde mittels Laborversuchen und geochemischer Simulation eine Wissen Basis geschaffen auf der für den Feldtest aufgebaut werden konnte.

### 5.2 Integrität des Deckgebirges

#### 5.2.1 Aufgabenstellung

Es gibt mehrere Abhandlungen zu den Tonen der Molassezone, wobei die Arbeit von Gier eine der umfassendsten darstellt [4]. Hier werden die pelitischen Sedimente (Tonfraktion) des über den Gaslagerstätten liegenden Deckgebirges besprochen. Die Mineralogie der jüngeren Sedimente (Miozän bis mittleres Oligozän) ist sehr einförmig: Sie bestehen aus Quarz, Plagioklas, Alkalifeldspat, Calzit, Dolomit, Gips, Pyrit und den Tonmineralen Smectit, Kaolinit, Glimmer und Chlorit wobei die Tonminerale mit 70-85 Gewichtsprozent der untersuchten Proben den Hauptbestandteil des Gesamtgesteins belegen. Für die Haller Serie, einer der Formationen in denen typischer Weise Erdgaslagerstätten zu finden sind, besteht das Deckgebirge zum Großteil aus mixed Layer Sedimenten (Illit/Smectit) sowie Illit in Reinform. Untergeordnet kommt auch noch Chlorit vor. Die Gaspermeabilität der überdeckenden Tone wurde an einem frischen Kern bestimmt und beträgt 0,2-1,64\*10-(20) m<sup>2</sup>. Wie aus den in Folge gemachten Untersuchungen des DBI Gas-Umwelttechnik GmbH Leipzig (DBI Leipzig) hervorgeht, ist diese Permeabilität auch für Wasserstoff gültig.

Das Tonmineral ist ein Gemisch vieler verschiedener Elemente, von denen einige als Elektronenakzeptoren auch mit Wasserstoff reagieren können. Hier wurde von Gier eine allgemeine Strukturformel entwickelt, die die statistische Zusammensetzung der Tone der Molassezone beschreibt.

Smectit: K0.14X0.44(Al1.10Mg0.46Fe0.36Ti0.01)Si<sub>4</sub>O<sub>10</sub>(OH)<sub>2</sub> + 0.64[KAlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>] +  $0.02Fe_3^+$  + 4.48H<sub>2</sub>O + 0.64H+

Illit: K0.44X0.19(Al1.26Mg0.42Fe0.38Ti0.01)Si\_3.52Al0.48O\_{10}(OH)\_2 + 0.34K^+ + 0.25X^+ + 0.04Mg\_2^+ + 2.4[H\_4SiO\_4]

Es ist zu sehen, dass das für mögliche Reaktionen verantwortliche Eisen nur einen kleinen Teil der Tonfraktion ausmacht, womit davon ausgegangen werden kann, dass die Tone der Molassezone gegenüber einer Reaktion mit Wasserstoff resistent sind.

Final wurde an der Montanuniversität auch noch die Bewegung des Wasserstoffs in der Lagerstätte anhand eines geologisch dynamischen Transportmodells dargestellt. Das Transportmodel fokussierte auf die Wasserstoffmigration im Reservoir und durch die umgebenden Deckschichten. Auf Basis der entstehenden räumlichen Aufteilung, schätzt es das kinetische Gleichgewicht von Wasserstoff an den Grenzen des Reservoirs ab. Wegen dem Mangel an Daten und Unsicherheiten verschiedener Natur, wurden Szenarios und Empfindlichkeiten untersucht, die eher in einer Risikobewertung als in absoluten Zahlen resultierten. Es muss jedoch festgehalten werden, dass Transportprozesse zu potentiellen Verlusten durch Gasdiffusion in die die Lagerstätte umgebenden Schichten führen können. Sogar bei geringen Eindringtiefen könnten Verluste im Bereich einiger Prozent liegen. Es kann jedoch angenommen werden, dass Diffusionsverluste nur in den ersten Speicherzyklen signifikant sind.

#### 5.2.2 Inhaltliche Darstellung

Die Bestimmung der Gaspermeabilitäten am Deckgebirge erfolgte bei 40°C mit Methan und Wasserstoff als Messgas. Sie wurde an repräsentativen Tonkernen aus der Molassezone durchgeführt. Die Permeabilität wird dabei nach folgender Gleichung bestimmt:

$k = \frac{\eta}{A \cdot \Delta p \cdot (1)}$	$\frac{1 \cdot Q}{+\Delta p/2}$		Gl. (1)
k	- Durchlässigkeitsbeiwert	[m²]	
Q	- Volumenstrom	[m³/s]	
Α	- Querschnittsfläche des Kerns	[m²]	
$\Delta p$	- Druckdifferenz	[Pa]	
l	- Kernlänge	[m]	
η	- dynamische Viskosität des Messgases <sup>1</sup>	[Pa s]	

Die Messungen erfolgten unter vorgegebenen Eingangsdruck (0,5-0,6 bar) bis zur Konstanz des gemessenen Volumenstromes. Die für die Berechnung der Permeabilität erforderlichen temperatur- und druckabhängigen Viskosität wurden aus den vom National Institute of Standards and Technology (NIST) bereitgestellten Daten entnommen.





Abbildung 3: Kern des Deckgebirges aus der Bohrung NU C2

Da es sich bei den Gesteinsproben nicht um "frisches" Material handelt, wurden diese zur Vorbereitung im Exsikkator in gesättigter Wasserdampfatmosphäre gelagert, um eine Rück-

Underground Sun Storage: Publizierbarer Endbericht 31. Oktober 2017

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Viskosität unter Messbedingungen (Druck, Temperatur)

Befeuchtung und damit ein Rück-Quellen der Tone zu erreichen. Es kann jedoch nicht davon ausgegangen werden, dass diese Rück-Befeuchtung ausreicht, um den Ursprungszustand wiederherzustellen. Abbildung 3 zeigt exemplarisch zwei der trockenen verwendeten Kerne.

#### 5.2.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Die gemessenen Permeabilitäten lagen etwa ein bis zwei Zehnerpotenzen über den Permeabilitäten gemessen an den frischen vergleichbaren Kernen eines Deckgebirges, welche damit wesentlich dichter sind.

Der Einfluss der Wassersättigung wurde mittels erneuter zweiwöchiger Einlagerung der Kerne im Exsikkator nachgewiesen. Danach zeigte sich eine erneute Verringerung der Permeabilität. In Tabelle 1 sind die Ergebnisse der beiden Messungen zusammengefasst.

Tabelle 1: Mess	sung von	Kern 2	NU C2
-----------------	----------	--------	-------

	Permeabilität [m <sup>2</sup> ]		
Formation	Methan	Wasserstoff	
1. Messung	<b>7,2</b> 10 <sup>-18</sup>	8,3 10 <sup>-18</sup>	
2. Messung	2,5 10 <sup>-18</sup>	2,7 10 <sup>-18</sup>	

Der Vergleich von Wasserstoff und Methanpermeabilität zeigt keinen eindeutigen Trend und ist unter Berücksichtigung der Messtoleranz in etwa gleich (Tabelle 2). Es zeigt sich jedoch, dass bei erhöhtem Tonanteil der Probe WEG, die Wasserstoffpermeabilität sogar noch niedriger ist als die des Methans. Damit kann insgesamt davon ausgegangen werden, dass die Widerstandsfähigkeit des Deckgebirges gegen Gasmigration von Wasserstoff nicht beeinflusst wird.

Tabelle 2: Permeabilitäten von Methan und Wasserstoff der untersuchten Kerne

		Permeabilität [m²]	
Formation	Kern-Nr.	Methan	Wasserstoff
NU C2	2	2,1 10 <sup>-18</sup>	2,3 10 <sup>-18</sup>
	3	2,5 10 <sup>-18</sup>	2,7 10 <sup>-18</sup>
WEG	1	8,5 10 <sup>-19</sup>	8,2 10 <sup>-19</sup>
	3	3,2 10 <sup>-18</sup>	1,9 10 <sup>-18</sup>

## 5.3 Veränderung des Verhaltens des Speichergases durch Wasserstoffbeimengung

#### 5.3.1 Einleitung

Der Fluss mehrerer Komponenten in einem porösen System wird im Allgemeinen als sehr komplex eingestuft. Wenn nun in ein solches System eine neue Komponente, in diesem Fall Wasserstoff, eingebracht wird, sind noch zusätzliche Einflüsse zu berücksichtigen. Entsprechend wurden mehrere Experimente bei der DBI Gas-Umwelttechnik GmbH Leipzig durchgeführt, um das Fließverhalten von Wasserstoff in der Lagerstätte zu bestimmen. Man könnte erwarten, dass Wasserstoff aufgrund seiner geringeren Dichte und kleineren Molekülgröße dem Erdgas vorauseilt. Dieser Effekt ist aus Aquiferspeichern bekannt und wird als "Viscous Fingering" bezeichnet [5]. Dabei dringt das weniger dichte Fluid auf Pfaden hoher Permeabilität in das dichtere ein und bildet die sogenannten Finger. Diese können dann nur zum Teil bzw. auch gar nicht zurückproduziert werden, da sie sich entweder im dichteren Fluid lösen oder von diesem umschlossen werden [6]. Im Fall der im Rahmen dieses Projektes untersuchten Lagerstätten wurden sowohl die Möglichkeit einer Vermischung mit dem Kissengas, sowie ein Abwandern des Wasserstoffs in den Aquifer in Betracht gezogen.

Ein weiterer Einflussfaktor ist die Permeabilität. Wenn sich mehrere Fluide durch ein und denselben Porenraum bewegen, dann hat jedes Fluid abhängig von seiner Sättigung eine gewisse effektive Permeabilität die ihr einen Teil der totalen Permeabilität zuweist. Die scheint jedoch eher für zwei Phasen Systeme (Wasser/ Gas) interessant zu sein. Trotzdem wurde auch dieser Aspekt betrachtet.

Da mit Wasserstoff eine neue Komponente in das System Speicher eingebracht wird, müssen auch die Effekte der Löslichkeit und der Adsorption betrachtet werden. Speziell im Fall der Löslichkeit gibt es aus der Literatur bisher keine belastbaren Modelle für salzhaltige Fluide. Hier wurde für Forecasts ein im Zuge des H<sub>2</sub>Store Projektes von DeLucia entwickeltes Modell [7] verwendet.

Für Adsorption sind aus der Literatur Methoden bekannt, bei denen die Benetzbarkeit eines Gesteins mittels kleinmoleküliger FCKW's geändert wird [24]. Ein ähnlicher Effekt könnte auch bei H<sub>2</sub> erwartet werden, wobei die Adsorptionskräfte natürlich auch von der Molekülgröße abhängen. Entsprechend wird der Adsorptionseffekt als vernachlässigbar angesehen. Zu guter Letzt wurde auch noch eine gravimetrische Segregierung sowie Diffusion in porösen Medien betrachtet.

#### 5.3.2 Aufgabenstellung DBI

Um die Mobilität der Gase bewerten zu können, wurden an der Montanuniversität und am DBI Leipzig Durchbruchsversuche durchgeführt. Die Versuche des DBI Leipzig wurden an tatsächlichen Lagerstättengestein gemacht und zielten darauf ab, den Durchbruch von Wasserstoff durch einen mit Methan gesättigten Kern sowohl im trockenen als auch bergfeuchten Zustand darzustellen. Ziel war es damit nachweisen zu können, ob Strömungsgeschwindigkeit, Wassersättigung und Inhomogenität einen Einfluss auf das Strömungsverhalten von Wasserstoff in porösen Medien hat. Dies war wichtig, um sowohl Rückschlüsse auf Fingering als auch auf das Lösungsverhalten von Wasserstoff zu haben.

#### 5.3.3 Inhaltliche Darstellung DBI

Für die Ermittlung der Gaspermeabilitäten wurde der angelegte Druck des Messgases sowie das permeierte Gasvolumen aufgezeichnet. Aus dem Anstieg des permeierten Volumens gegen die Zeit wurde der Volumenstrom ermittelt. In Abbildung 4 ist der Messplatz dargestellt.



#### Abbildung 4 Messplatz zur Bestimmung der Gaspermeabilität

Zur Beurteilung des Einflusses der Gaspermeabilität auf die Verdrängungsfunktionen wurden vor der Durchführung der Verdrängungsversuche die Gaspermeabilitäten der Kerne aus den beiden unterschiedlichen Bohrungen bestimmt. In Tabelle 3 sind die ermittelten Gaspermeabilitäten zusammengefasst.

#### Tabelle 3: Gaspermeabilitäten der untersuchten Kerne

Formation	Kern-Nr.	Permeabilität [m <sup>2</sup> ]
Haller Serie	BA C1	3.6 E-13
Obere Puchkirchen Serie	NU W8	2.3 E-14

Zur Messung der Verdrängungskurven wurden die Kerne vor Versuchsbeginn mit Methan bis zur konstanten Strömungsgeschwindigkeit durchströmt (delta p von ~0,5 bar). Die Kontrolle der Sättigung erfolgte gaschromatographisch durch Wiederholungsmessungen. Anschließend wurde in den Kern Wasserstoff mit konstanter Strömungsgeschwindigkeit injiziert.

#### 5.3.4 Ergebnisse und Schlussfolgerungen DBI

In den beim DBI Gas- und Umwelttechnik getesteten Kernen zeigt sich kein Unterschied in der Kurvenform der durch die Strömungsgeschwindigkeit hervorgerufen wird. Allerdings zeigt die Durchbruchskurve gemessen am NU W8 Kern einen gleichmäßigeren Anstieg bzw. einen gleichmäßigen asymptotischen Verlauf des H<sub>2</sub> Anteils als im BA C1 Kern. Die Durchbruchskurve im BA C1 Kern zeigt im späteren zeitlichen Verlauf einen erneuten Anstieg der H<sub>2</sub>-Konzentration. Abbildung 5 zeigt die gemessen Durchbruchskurven an den beiden Kernen bei konstanter Strömungsgeschwindigkeit.



Abbildung 5: Ermittelte Durchbruchskurven an den trockenen Kernen BA C1 und NU W8 bei Strömungsgeschwindigkeiten von 3,5 cm/min

Ein möglicher Grund für die unterschiedlichen Kurvenformen ist, der Porenaufbau in den beiden Kernen. So sind die NU W8 Kerne bedeutend heterogener als die BA C1 Kerne, was zu einem geänderten Fließverhalten führt.

Die Kurvenform bei Durchströmversuchen in feuchten Kernen ist differenziert zu betrachten. So nimmt sowohl bei den NU W8 als auch bei den BA C1 Kernen der Wasserstoff zunächst nochmal ab bevor er dann schlussendlich in ein Plateau ausläuft. In beiden Fällen ist die Kurvenform ähnlich aber bei NU W8 ist der Wasserstoff langsamer beim Durchbruch. Abbildung 6 zeigt den Vergleich der Verdrängungskurven an den feuchten Kernen.



Abbildung 6: Vergleich der Verdrängungsfunktion an den feuchten Kernen NU W8 /8.9 cm/min) und BA C1 (4.3 cm/min)

Eine mögliche Erklärung bietet hier die Löslichkeit von Wasserstoff und CH<sub>4</sub> in Wasser. Die Löslichkeit von Wasserstoff in Salzwasser ist geringer als in Süßwasser. Da diese Löslichkeit auch von der Sättigung eines Stoffes in der Gasphase abhängt, kann davon ausgegangen werden, dass es an einem gewissen Punkt zu einem Gleichgewicht kommt bei dem ein ähnlicher Anteil an CH<sub>4</sub> aus dem Wasser abgegeben wird, als H<sub>2</sub> im Wasser gelöst wird. Wenn dann durch die Sättigung von Wasserstoff in Wasser plötzlich mehr CH<sub>4</sub> frei wird als Wasserstoff nachgeschoben wird, dann kann es kurzfristig zu einer scheinbaren Abnahme von Wasserstoff im Gas kommen.

Eine weitere mögliche Erklärung wäre eine Reaktion des Wasserstoffs in der wässrigen Phase mit anderen im Wasser gelösten Komponenten. Es konnten allerdings keinerlei Anhaltspunkte für eine solche Veränderung gefunden werden. In Abbildung 7 sind die Verdrängungskurven gemessen am wasser-benetzten Kern BA C1 bei zwei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten von 4.3 und 6.5 cm/min dargestellt.



Abbildung 7: Vergleich der Verdrängungskurven gemessen am haftwassergesättigten Kern BA C1 26 bei Strömungsgeschwindigkeiten von 4.3 und 6.5 cm/min

Der Vergleich der Kurven zeigt, dass sich bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten der Kurvenverlauf dem zeitlichen Verlauf der Verdrängungsfunktion am trockenen Kern angleicht. Es tritt kein Maximum der Wasserstoffkonzentration auf. Damit zeigt sich ein deutlicher Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit auf den Kurvenverlauf. Bei höheren Strömungsgeschwindigkeiten spielt der Stoffaustausch durch Ad- und Desorption und Lösung wohl eine deutlich geringere Rolle.

#### 5.3.5 Aufgabenstellung MUL

Die Versuche der Montanuniversität Leoben (MUL) sollten einerseits die Theorie der gravimetrischen Segregierung untersuchen und andererseits die Fließversuche des DBI Leipzig auf größerem Maßstab darstellen. Da bei der MUL die Fließstrecke 7m betrug, musste auf Natursand zurückgegriffen werden, da Lagerstättenkerne in dieser Länge selten und sehr aufwendig zu entnehmen sind. Der Abgleich der Versuche des DBI Leipzig und der MUL zeigt jedoch recht ähnliche Ergebnisse womit der gewählte Zugang als vernünftig angesehen wird.

Final wurden die Laborexperimente auch noch von einem Simulationsmodel begleitet um die Erkenntnisse auf Lagerstättengröße zu übertragen und eine Aussage über die Bewegung des Wasserstoffes in der Lagerstätte zu machen.

Außerdem wurde anhand einer Versuchsanlage die Charakterisierung des Verhaltens von Mischungen aus Erdgas und Wasserstoff unter statischen Bedingungen untersucht. Diese Arbeiten wurden in einem eigenen Arbeitspaket unter dem Titel "de-Mixing of Natural Gas and Hydrogen" zusammengefasst.

Bei den statischen Versuchen soll eine mögliche Entmischung von Wasserstoff und Methan in abgeschlossenen Reaktoren, gefüllt mit Sand, bei drei unterschiedlichen Drücken in Langzeittests untersucht werden. Die dynamischen Versuche sollen Erkenntnisse beim Durchströmen einer porösen Schüttung (poröses Gestein) hinsichtlich der Entmischung beider Gase aufzeigen.

#### 5.3.6 Inhaltliche Darstellung MUL

Die Versuchsanlage besteht aus drei Reaktoren. Die Druckrohre sind für Drücke von 10 bar, 25 bar und 40 bar ausgelegt. Der Innendurchmesser beträgt 150 mm und die Länge jedes Reaktors beträgt somit 7 m. Daraus ergibt sich ein Innenvolumen von 123,7 Liter pro Reaktor (Abbildung 8).

Die Reaktoren wurden druckgeprüft und vom TÜV abgenommen.

Die Reaktoren sind mit Drucksensoren, Temperatursensoren, Heizmanschetten, einem Datenerfassungssystem und Verbindungen zu einer Gasanalytik ausgestattet.



# Abbildung 8: Drucktransmitter: a) Einbaulage mit Sicherheitsventil; b) unterer Reaktorteil; c) oberer Reaktorteil

Die Reaktoren werden auf 40°C geheizt und die Temperatur wurde über die gesamte Versuchsdauer konstant gehalten. Die Heizung erfolgte über Heizmanschetten.

Die Werte der Druck und Temperaturmessung wurden stündlich über die gesamte Versuchsdauer aufgezeichnet. Zur Datenerfassung wird das Datenerfassungssystem Field Point von National Instruments mit der Visualisierungssoftware Lookout verwendet (Abbildung 9). Die Temperaturregelung und die Module der Datenerfassung wurden in einen Schaltschrank mit der Stromversorgung eingebaut.



Abbildung 9: Visualisierung der Datenerfassung

Zur Gasanalyse wird ein Prozess – Gas – Chromatograph der Fa. ABB Modell PGC 1000 verwendet. Der PGC wurde mit dem Kopf und dem Boden der Reaktoren mittels Kapillarleitungen (Innendurchmesser 1 mm) zur Gasentnahme verbunden (Abbildung 10).



#### Abbildung 10: Prozess – Gas – Chromatograph mit Darstellung der Kapillarleitungen

#### Versuchsbeschreibung: statische Versuche

Um das poröse Gestein im Reservoir nachzubilden, wurden die Reaktoren mit Sand befüllt (Abbildung 11). Der Sand wurde in einen Drehrohrofen bei über 100°C getrocknet und in die Reaktoren verfüllt. Mit der Annahme einer kubisch dichtesten Kugelpackung (Lückenvolumen von 26%) ergibt sich ein freies Gasvolumen in den Reaktoren von 32 Liter pro Reaktor. Für Sand mit der vorliegenden Korngrößenverteilung liegt das Lückenvolumen
der kubisch dichtesten Kugelpackung zwischen der in der Literatur angegebenen Gesamtporosität und effektiver Porosität. Somit ergeben sich für die Druckreaktoren Gasvolumina nach Tabelle 4.

Reaktordruck [bar]	Gasvolumen [Normliter]
40	1286,5
25	801,1
10	321,3

Tabelle 4: Gasvolumina der Reaktoren in Abhängigkeit der Druckstufe

Nach erfolgter Aufstellung, Instrumentierung, Befüllung mit Sand und Spülung mit Stickstoff wurden die Reaktoren mit Gas beaufschlagt. Als Füllgas wurde ein Prüfgas Kl.1 mit 8% Wasserstoff und Rest Methan bei 12 monatiger Stabilitätsgarantie der Fa. Linde verwendet. Dabei wurde bei Reaktor 1 ein Druck von 10 bar, bei Reaktor 2 ein Druck von 25 bar und bei Reaktor 3 ein Druck von 40 bar eingestellt.





Abbildung 11: Trocknung des Sandes im Drehrohr (a), Lochblech mit Filterpapier (b), Reaktor leer (c), Reaktor befüllt (d-e)

### Versuchsbeschreibung: dynamische Versuche

Die dynamischen Versuche wurden trocken und nass durchgeführt. Bei den nassen Versuchen wurde im unteren Teil des Reaktors 5 Liter Wasser zugegeben. Das entspricht in etwa 15 % vom freien idealen Lückenvolumen. Die trockenen Versuche wurden mit unterschiedlichen Gaskonzentrationen, unterschiedlichen Drücken, unterschiedlichen Durchflüssen und unterschiedlichen Background-Gasen durchgeführt.

Bei den dynamischen Versuchen wurde der Reaktor zuerst mit Stickstoff gespült und dann mit Stickstoff ein gewisser Versuchsdruck eingestellt. Im Anschluss daran wurde der Reaktor mit Prüfgas bei Versuchsdruck durchspült.

## 5.3.7 Ergebnisse und Schlussfolgerungen MUL

## 5.3.7.1 Ergebnisse der statischen Versuche

Die Versuchszeit des Reaktors mit 10 bar Druck betrug ein Jahr vom 30.04.2014 bis 27.04.2015. Der Verlauf des Druckes und der Temperatur über die Versuchszeit sind in Abbildung 12 und Abbildung 13 beispielhaft dargestellt. Druck und Temperatur der Reaktoren mit 25 bzw. 40 bar wurden ebenfalls aufgezeichnet und zeigten das gleiche Verhalten.

Die Drücke P Top und P Bottom nehmen durch Entnahme von Probengas zur Analyse und auf Grund von kleineren Undichtheiten über die Versuchszeit ab. Die Schwankungen der Drücke ergeben sich durch den Einfluss der Umgebungstemperatur. In Abbildung 14 sind beispielhaft Druck und Umgebungstemperatur für den Reaktor mit 10 bar dargestellt. Daraus ist die Korrelation von Druck und Temperatur deutlich zu sehen.

Die Temperatursensoren T1 und T4 sind in der Mitte der oberen und unteren Rohre angebracht, die von Heizmanschetten umgeben sind. Diese Sensoren zeigen eine sehr geringe Schwankung. Die Temperatursensoren T2 und T3 sind am Rand der mittleren Heizmanschette angebracht und zeigen trotz Isolierung der benachbarten Rohrstücke eine Abhängigkeit von der Umgebungstemperatur.

Die Durchschnittstemperaturen über die Versuchsdauer in den Reaktoren sind in Tabelle 5 wiedergegeben. Sie entsprechen den angenommenen Reservoirbedingungen.

	Durchschnittstemperaturen [°C]				
	Reaktor 10 barReaktor 25 barReaktor 40 bar				
T1	40.197	39.928	39.708		
T2	40.093	40.923	41.734		
Т3	39.426	37.021	39.532		
T4	40.28	40.283	40.406		
Mittelwert T1-T4	40.249	39.539	40.347		

#### Tabelle 5: Durchschnittstemperaturen der Reaktoren



Abbildung 12: Druckverlauf von Reaktor mit 10 bar über die Versuchszeit



Abbildung 13: Temperaturverläufe von Reaktor 10 bar über die Versuchszeit



Abbildung 14: Druckverlauf Reaktor 10 bar und Umgebungstemperatur.

Während der Versuchsdauer wurde wöchentlich eine Gasanalyse mittels Prozess-Gas-Chromatograph vom Kopf und vom Boden der Reaktoren genommen. Vor jeder Probennahme wurden die Gasleitungen zum PGC mit Stickstoff gespült, weswegen dieser auch bei der Gasmessung detektiert wurde. Um den Stickstoffanteil zu eliminieren, wird als Ergebnis das Verhältnis von Methan zu Wasserstoff herangezogen. Die Messung des reinen Prüfgases aus der Flasche ergab ein Verhältnis von Methan zu Wasserstoff von 12.227. In den folgenden Abbildungen (Abbildung 15; Abbildung 16; Abbildung 17) ist das Verhältnis von Methan zu Wasserstoff am Kopf (ratio top) und am Boden (ratio bottom) der Reaktoren über die wöchentlichen Probennahmen aufgetragen. Die linearen Trends der Verhältnisse zeigen kein Auseinanderdriften über der Versuchszeit. Ein Auseinanderdriften der Messwerte für ratio top und ratio bottom würde auf eine Entmischung der beiden Komponenten hinweisen. Außerdem liegen die Messwerte innerhalb der Toleranzgrenzen

des Messgerätes.



Abbildung 15: Verhältnis CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> für Reaktor 10 bar



Abbildung 16: Verhältnis CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> für Reaktor 25 bar



Abbildung 17: Verhältnis CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> für Reaktor 40 bar

Die statistischen Werte der Gasmessungen ergeben geringere Abweichungen über die Versuchsdauer als die Abweichungen, die vom Hersteller des Analysegerätes angegeben werden. Somit kann man davon ausgehen, dass es zu keiner Entmischung der Gase unter statischen Bedingungen kommt.

### 5.3.7.2 Ergebnisse der dynamischen Versuche

Die Durchbruchskurven mit einem Reaktordruck von 10 bar sind in der Abbildung 18 dargestellt. Um eine Verzögerung oder ein Vorauseilen einer Gaskomponente besser zu erkennen, wird nachfolgend die 1. Ableitung der Durchbruchskurve verwendet. Die 1. Ableitung stellt die Änderung der Konzentration über die Zeit dar. Sie zeigt ein Maximum der Konzentrationsänderung. Die Maxima der einzelnen Gaskomponenten sind zeitlich verschoben und zeigen beim Verdrängen des Stickstoffs eine Verzögerung von Wasserstoff. Beim Verdrängen des Prüfgases durch Stickstoff erfolgt umgekehrt eine Verzögerung von Methan. Dieser Effekt verstärkt sich bei einem Reaktordruck von 20 bar. Die Verzögerungszeiten sind in Tabelle 6 angegeben.



Abbildung 18: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 10 bar Reaktordruck

	Verdrängung von N2 durch	Verdrängung von Prüfgas
	Prüfgas	durch N <sub>2</sub>
	Verzögerung von H <sub>2</sub> in sec	Verzögerung von CH <sub>4</sub> in sec
10 bar	70	16
20 bar	493	28

#### Tabelle 6: Verzögerungszeiten bei 10 und 20 bar Reaktordruck mit Prüfgas 8% H<sub>2</sub> und 92% CH<sub>4</sub>



#### Abbildung 19: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 20 bar Reaktordruck

Versuche mit unterschiedlichen Gaskonzentrationen wurden mit einem Prüfgas mit 20% Wasserstoff und 80% Methan, jeweils mit 10 bar und 20 bar Reaktordruck durchgeführt.

Auch bei diesen Versuchen kommt es zu Verzögerung von  $H_2$  beim Befüllen mit Prüfgas und umgekehrt zu einer Verzögerung von  $CH_4$  beim Verdrängen mit  $N_2$  (Abbildung 20; Abbildung 21). Die sich ergebenden Verzögerungszeiten sind in

Tabelle 7 dargestellt.

	Verdrängung von N2 durch	Verdrängung von Prüfgas
	Prüfgas	durch N <sub>2</sub>
	Verzögerung von H <sub>2</sub> in sec	Verzögerung von CH <sub>4</sub> in sec
10 bar	102	23
20 bar	420	44

#### Tabelle 7: Verzögerungszeiten bei 10 und 20 bar Reaktordruck mit Prüfgas 20%H<sub>2</sub> und 80% CH<sub>4</sub>



Abbildung 20: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 10 bar Reaktordruck



Abbildung 21: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 20 bar Reaktordruck

Ein Versuch mit erhöhtem Durchfluss (28 statt 17 l/min) wurde mit Prüfgas 8%  $H_2$  und 92%  $CH_4$  bei einem Reaktordruck von 10 bar durchgeführt.

Tabelle 8: Verzögerungszeiten bei 10 bar und erhöhtem Durchfluss mit Prüfgas 20% $\rm H_2$ und
80% CH₄

	Verdrängung von N2 durch	Verdrängung von Prüfgas
	Prüfgas	durch N <sub>2</sub>
	Verzögerung von H <sub>2</sub> in sec	Verzögerung von CH <sub>4</sub> in sec
10 bar	58	13

Der erhöhte Durchfluss verringert etwas die Verzögerungen (Tabelle 8 und Abbildung 22), ansonsten sind die Ergebnisse wie bei den Versuchen mit einem Durchfluss von 17 l/min.



# Abbildung 22: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 10 bar Reaktordruck und erhöhtem Durchfluss

Versuche mit Methan anstatt Stickstoff als Hintergrundgas wurden mit 2 Prüfgasen unterschiedlicher Konzentrationen und einem Reaktordruck von 10 bar durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 23 und Abbildung 24 wiedergegeben. Hier sieht man die Durchbruchskurve von Wasserstoff mit der daraus resultierenden Verdrängung von Methan. Die Durchbruchskurve unterscheidet sich nicht von den anderen Versuchen.



Abbildung 23: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung mit Methan als Hintergrundgas, Druck 10 bar und Prüfgas 8%  $H_2$  und 92% CH<sub>4</sub>.



Abbildung 24: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung mit Methan als Hintergrundgas, Druck 10 bar und Prüfgas 20%  $H_2$  und 80%  $CH_4$ .

Alternativ zu den Ergebnissen der ersten Ableitung wurde in einem zweiten Schritt versucht den Gesamtversuch zu bewerten. So stellt die erste Ableitung zwar trefflich dar welches der beiden Gase einen schnelleren Anstieg in der Konzentration aufweist, jedoch kann dadurch noch keine Aussage über den Gesamtfluss gemacht werden. Nachdem die Konzentrationen sehr schleifend ansteigen, wurde als zweites Kriterium ein Anteilsfilter verwendet, der die Zeit misst bis zu der ein gewisser Anteil an der Gesamtkonzentration erreicht wird. Hier ist zu sehen, dass Methan zwar anfänglich manchmal noch vor eilt (schnellerer Anstieg der Konzentration), dass aber der Wasserstoff sehr schnell aufholt und schneller einen stabilen 100%-igen Fluss erreicht. Entsprechend zeigte sich bei den trockenen Durchströmversuchen, dass Wasserstoff egal in welcher Konstellation grundsätzlich vor eilt. Es ist aber dazu zu bemerken, dass der Unterschied minimal ist (Abbildung 25). Dieser wird auf latente Adsorptionskräfte zurückgeführt, die den Wasserstoff am Beginn leicht abbremsen. Untermauert wird dies auch davon, dass am anderen Ende des Reaktors immer ein verringerter Wasserstoffanteil ankam als im Ursprungsgemisch vorhanden war. Dies änderte sich auch bei langen Durchflusszeiten nicht. Es kann also davon ausgegangen werden, dass sich CH<sub>4</sub> und H<sub>2</sub> praktisch mit gleicher Geschwindigkeit durch den trockenen Porenraum bewegen.



Abbildung 25: Verdrängung des Stickstoffes bei 10 Bar und 8% H<sub>2</sub> bzw. bei 20 Bar und 20% H<sub>2</sub>.

Beim erneuten Spülen der Reaktoren mit Stickstoff war der Wasserstoff wieder etwas schneller, der Unterschied war aber so gering, dass wiederum von einer gleichförmigen Fließgeschwindigkeit ausgegangen werden kann (Abbildung 26). Es wurde noch eine weitere Experimentreihe gestartet, bei welcher höhere Strömungsgeschwindigkeiten angelegt wurden. Auch hier zeigte sich, dass praktisch beide Gase gleich schnell sind.



#### Abbildung 26: Verdrängung des Gasgemisches bei 10 Bar und 8% bzw. bei 20 Bar und 20% H<sub>2</sub>.

Bei den Versuchen mit nassen Bedingungen sind die Verzögerungen genau umgekehrt zu den Versuchen mit trockenen Bedingungen. Es verzögert sich das Methan bei der Verdrängung von N<sub>2</sub> durch das Prüfgas und der Wasserstoff verzögert sich bei der Verdrängung von Prüfgas durch N<sub>2</sub>. Neben Adsorptionseffekten spielen hier auch Absorptionseffekte mit unterschiedlicher Löslichkeit der Gase in Wasser eine Rolle. So ist Methan in Leitungswasser etwa um einen Faktor 10 besser löslich als Wasserstoff ([9] [7]). Die Ergebnisse sind in den Abbildung 27 und Abbildung 28 sowie die Verzögerungszeiten in Tabelle 9 dargestellt.

#### Tabelle 9: Verzögerungszeiten bei 10 und 20 bar unter feuchten Bedingungen mit Prüfgas 8% H<sub>2</sub> und 92% CH<sub>4</sub>

Druck	Verdrängung von N2 durch	Verdrängung von Prüfgas
	Prüfgas	durch N <sub>2</sub>
	Verzögerung von CH₄ in sec	Verzögerung von H <sub>2</sub> in sec
10 bar	121	23
20 bar	2	44



Abbildung 27: Durchbruchkurven mit 1. Ableitung bei nassen Bedingungen, Druck 10 bar.



Abbildung 28: Durchbruchkurven nasse Bedingungen, Druck 20 bar.

Hier decken sich die Ergebnisse der ersten Ableitung mit den Ergebnissen der Anteilsfraktionierung. In beiden Fällen bricht der Wasserstoff etwas schneller durch. Es ist allerdings zu bemerken, das Methan durch Wasser noch stärker gebremst wird, da es sich stärker in Wasser löst als Wasserstoff.



#### Abbildung 29: Verdrängung des Gemisches bei 10 Bar und 8% H<sub>2</sub> am feuchten Kern

Da in einer ausgeförderten Erdgaslagerstätte die entsprechende Methansättigung schon vorherrscht, wird also der noch nicht gesättigte Wasserstoff durch Lösung und Adsorption etwas gebremst werden. Im Allgemeinen kann aber festgestellt werden, dass praktisch kein Geschwindigkeitsunterschied zwischen Methan und Wasserstoff im porösen Raum existiert. Die in den Experimenten gemessenen Unterschiede liegen innerhalb weniger Sekunden und können somit auf Messungenauigkeiten zurückgeführt werden.

Generell sind jedoch die Ergebnisse der dynamischen Versuche sehr schwer zu interpretieren. So konnte zwar in einer zweiten Näherung gezeigt werden, dass der Wasserstoff minimal vorauseilt (wie aus der Literatur erwartet), bezugnehmend auf die Messungenauigkeit ist hier jedoch keine definitive Antwort möglich. Für einen möglichen weiteren Versuch ist angedacht, die Fließstrecke nochmals zu erweitern um die Verhältnisse in der Lagerstätte noch besser darstellen zu können. Jedoch ist auch zu bemerken, dass selbst wenn es zu einer Trennung der Gase durch ihre unterschiedliche Viskosität kommt, später wieder mit einer Vermischung zu rechnen ist, da sich die Diffusion im porösen Raum als stärker als erwartet erwiesen hat. Dies dürfte auch die Erklärung sein, warum es in den statischen Versuchen zu keiner Entmischung kam da hier die Diffusion noch einen stärkeren Einfluss hat und das System bemüht ist ein Sättigungsgleichgewicht zu bekommen und beizubehalten.

## 5.4 Transport- und Diffusionsmodellierung an der Montanuniversität

## 5.4.1 Aufgabenstellung

Dieser Teil beinhaltet eine Zusammenfassung der durchgeführten Schritte um Transportund Diffusionsmodelle zu erstellen und diskutiert die potenzielle Wasserstoffbewegung in den porösen geologischen Schichten.

Ein geologisches Modell einer konkreten betrachteten Lagerstätte wurde als Basis für die Transportmodellierungsstudie erstellt, strukturelle Karten, Bohrdaten, Bohrungsmarkierungen, Protokolle und seismische Daten wurden ausgewertet und verwendet um das geologische Modell zu bestimmen. Die Modellschritte sind in Abbildung 30 skizziert.



Abbildung 30: Schnitte geologischer Modellierung: Digitalisierung struktureller Karten, Gewinnung von Bohrmarkierungen aus Bohrprotokollen, seismic cube interpretation and flow simulation grid construction.

### 5.4.2 Inhaltliche Darstellung

Nachdem das statische Modell konstruiert wurde, wurde ein Reservoir Modell im CMG (Compositional Reservoir Simulator) erstellt. Wegen der geringen Mächtigkeit des Reservoirs und dem Mangel an Daten, wurde die Verteilung der Porosität und Permeabilität im Reservoir als homogen angenommen. Die Peng-Robinson (1978) Zustandsgleichung wurde ausgewählt um die Gasphase zu beschreiben. Eine Gasmischung (10% H<sub>2</sub> + 90% CH<sub>4</sub>), wurde in das Reservoir mit einer Injektionsrate von 100 Nm<sup>3</sup> (H<sub>2</sub>)/h für eine Dauer von drei Monaten injiziert. Advektions- und Diffusionstransportprozesse wurden herangezogen um die Bewegung des Gases und die Wasserstoffkonzentrationen im Reservoir zu beschreiben. Die Ausweitung der Gasfront wurde simuliert und als räumliche Verteilung der Wasserstoffkonzentration als Funktion der Zeit in Abbildung 31 dargestellt.



Abbildung 31: Verteilung der Wasserstoffkonzentration in der Lagerstätte über die Zeit..

Einen Vergleich der Wasserstoff- und Methanverteilung zeigt das Model in Abbildung 32. Die Bereiche, die vom Wasserstoff laut diesem Modell benetzt werden, wurden in ein analytisches Diffusionsmodell eingegeben um die Diffusionsverluste bis zum Konzentrationsausgleich des Wasserstoffs an den Grenzen des Reservoirs, wie im Folgenden besprochen, zu berechnen.



Abbildung 32: Vergleich der räumlichen Verteilungen von CH<sub>4</sub> und H<sub>2</sub> im Reservoir.

### 5.4.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Während das Reservoir Speicherkapazität für eine wasserstoffbasierte Energieversorgung bietet, sind Tonsteine verschließende Schichten, die generell wassergesättigt sind, da sie einen ausreichenden kapillaren Verdrängungsdruck haben um die Ausströmung eines leichten nichtbenetzenden Fluides, wie Erdgas und Wasserstoff zu verhindern [10]. Nichtsdestotrotz könnte ein Wasserstoffverlust durch Diffusion bis zum Konzentrationsausgleich möglich sein. Ein Konzeptmodell wurde erstellt, um die Möglichkeit von Wasserstoffverlusten aufgrund von Diffusion in die verschließenden, wassergefüllten Schichten zu untersuchen. Die Löslichkeit von Wasserstoff und anderen Gasen in das Formationswasser spielt dabei eine entscheidende Rolle. Die injizierte Mischung aus Wasserstoff und Methan berührt die umgebenden Abdichtungs-schichten. Der Wasserstoff könnte sich sowohl im interstitialen Ton- als auch im Porenwasser lösen und dann durch Diffusion transportiert werden. Die Menge an Wasserstoff, die in den überlagernden Schichten gebunden sein kann, ist eine der H<sub>2</sub> Verlustquellen. Es sollte erwähnt werden, dass der Konzentrationsgradient und damit die Menge an Gasverlust im ersten Speicherzyklus am größten ist und in den folgenden Zyklen beträchtlich kleiner werden kann [11]. Unter Verwendung der 1D Diffusionsgleichung, wurde der Diffusionsverlust von Wasserstoff für eine Periode von einem Jahr Speicherung, wobei drei Monate kontinuierliche Wasserstoff Injektion mit den Daten aus Tabelle 10 angenommen wurden, evaluiert.

Diffusionsverlust =  $\frac{\text{Menge an verlorenem H2 während Einschlussphase (z. B. : 1 Jahr)}}{\text{Menge an injiziertem H2 in 3 Monaten}}$ 

Wasserstoff Injektionsrate	100 Nm3/h
Gas FVF (bei 75 bar)	0.0153 rm3/sm3
Wasserstoff Lagerstätten Injektionsrate	6535 rm3/h
Injiziertes Wasserstoff Volumen	14117647rm3
Lagerstättendruck nach der Injektion	75bar
Lagerstättentemperatur	40°C
Wasserstoff Z-Faktor	1.05
Wasserstoffkonzentration in der Lagerstätte	274 mol/m3
Molanzahl des injizierten Wasserstoffs	3.88E+09 mole

#### Tabelle 10: Injektions- und Reservoirdaten für die Berechnung des Diffusionsverlusts.

Unter der Annahme, dass der Diffusionskoeffizient von Wasserstoff bei  $4.5e^{-9}$ [m<sup>2</sup>/s] [12] liegt, wurde die Konzentration von H<sub>2</sub> in den überdeckenden Schichten und die jeweilige Eindringtiefe mittels analytischer Lösung berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 33 zusammengefasst.



Abbildung 33: H<sub>2</sub>-Konzentration vs. Eindringtiefe des H<sub>2</sub> in die Deckschichten

Aufgrund der geringen Mächtigkeit des Reservoirs, kann angenommen werden, dass die Mischung des injizierten Gases gleichmäßig im Reservoir verteilt ist. Da Diffusion im 3D Raum stattfindet, kann der Wasserstoff in die gesamte Mantelfläche diffundieren, was ein maximales Verlustszenario darstellt. Tabelle 11 fasst verschiedene Szenarien und die Fälle Diffusionsverluste für unterschiedliche zusammen. dazugehörigen Zwei Diffusionskoeffizienten für Wasserstoff im Lagerstättenwasser (4.5e<sup>-9</sup> und 4.5e<sup>-10</sup> [m<sup>2</sup>/s]) [11], wobei letzterer die Heterogenität des Reservoirs berücksichtigt wurden betrachtet. Der Diffusionsverlust von Wasserstoff wurde für zwei Fälle geschätzt. Der erste Fall berücksichtigt nur Diffusion nach oben durch die Deckschichten und der zweite Fall beachtet ebenfalls Diffusion in die gesamte Mantelfläche. Von den Ergebnissen schätzen wir den minimalen Diffusionsverlust auf 0.16% und den maximalen Diffusionsverlust auf 6.05%. Wie oben erwähnt, erwarten wir einen geringeren Diffusionsverlust während nachfolgenden Speicherzyklen.

Tabelle 11: Diffusionsverlust in die Deckschichten während 1 Jahr Wasserstoffspeicherung unter Betrachtung zweier Diffusionskoeffizienten.

Diffusions Koeffizient	Länge (m)	Breite(m)	Eingedrungene s Volumen	Diffusions- verluste Wasserstoff	Diffusions- verluste Deckschicht	Diffusions -verluste Mantel
	1000	1000	1.17E+08	3.02E-02	3.02%	6.05%
2	800	600	5.62E+07	1.45E-02	1.45%	2.90%
<b>4.5e-9</b> [m /s]	500	500	2.93E+07	7.56E-03	0.76%	1.51%
	400	400	1.87E+07	4.84E-03	0.48%	0.97%
	1000	1000	3.82E+07	9.87E-03	0.99%	1.97%
4.5e-10	800	600	1.83E+07	4.74E-03	0.47%	0.95%
[m /s]	500	500	9.55E+06	2.47E-03	0.25%	0.49%
	400	400	6.11E+06	1.58E-03	0.16%	0.32%

## 5.5 Künstliches Lagerstättenwasser

### 5.5.1 Aufgabenstellung

Für die Versuche zur Reservoiralteration (siehe 5.6) wurde künstliches steriles Lagerstättenwasser verwendet. Der Grund dafür ist, dass damit die Ergebnisse reproduzierbar gemacht werden und es außerdem zu keinen Nebenerscheinungen durch mikrobiologische Stoffwechselprozesse kommt. Um jedoch ausschließen zu können, dass dieses nicht originäre Lagerstättenwasser einen Einfluss auf die verwendeten Kerne hat, wurde eine weitere Versuchsreihe gestartet. Dabei wurde Kernmaterial, das auch in den Alterationsversuchen verwendet wurde, für 9 Monate im künstlichen Lagerstättenwasser und bei Lagerstättentemperatur und Druck (40°C; 100 Bar) eingelagert.

### 5.5.2 Inhaltliche Darstellung

Als Vorbereitung der Versuche wurde eine Wasserprobe in einer repräsentativen Lagerstätte gezogen. Diese wurde dann von der DBI Gas-Umwelttechnik GmbH Leipzig als Referenz herangezogen, um künstliches Wasser mit der gleichen Anzahl an gelösten Ionen sowie dem gleichen pH-Wert abzumischen.

Vor Beginn der Einlagerung wurden die Wasser- und Gaspermeabilitäten der verwendeten Kerne bestimmt. Es wurde eine homogene und eine stark heterogene Lagerstätte gewählt, wobei die Zweite eine höhere Diversität bei den Mineralen aufweist. Durch diese Herangehensweise wurde angestrebt, auch generell eine Aussage über die Reaktionsfreudigkeit verschiedener Minerale sowie den Einfluss eines größeren Tonanteils (Swelling) treffen zu können.

Nach Ende der Einlagerung wurden die Kerne bei langsamer Entspannung des Druckes (Bruchrisiko bei schneller Entspannung) aus den Reaktoren entnommen und die sowohl optisch (Ablagerungen) als auch physikalisch (Permeabilität) untersucht.

### 5.5.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

In Abbildung 34 und Abbildung 35 sind die Kerne nach der Einlagerung dargestellt. Zum Vergleich sind die Nullproben gegenübergestellt.





Abbildung 34: Kern der Bohrung BA C1 Nullprobe (links) und nach der Einlagerung (rechts)





# Abbildung 35: Fotos der Kerne aus der Bohrung NU Nullprobe (links) und nach der Einlagerung (rechts)

Augenscheinlich kam es zu einer bräunlichen Verfärbung der Kerne. Dies ist durch die Ausfällung von Eisen aus dem Lagerstättenwasser und den Tonen zu erklären. Eine ähnliche Verfärbung konnte auch bei den Kernen, die bei anderen Experimenten im Einsatz waren, festgestellt werden.

In Tabelle 12 sind die ermittelten Gas- und Wasserpermeabilitäten der Kerne vor und nach der neunmonatigen Einlagerung zusammengefasst.

		k <sub>w,g</sub> [m²]	k <sub>w</sub> [m²]
BA C1	vor Einlagerung	9.73 10 <sup>-14</sup>	1.45 10 <sup>-14</sup>
	nach Einlagerung	7.00 10 <sup>-14</sup>	2.73 10 <sup>-14</sup>
NU W8	vor Einlagerung	3.36 10 <sup>-15</sup>	8.20 10 <sup>-16</sup>
	nach Einlagerung	3.14 10 <sup>-15</sup>	9.68 10 <sup>-16</sup>

#### Tabelle 12: Vergleich der Wasser- und Gaspermeabilitäten vor und nach der Einlagerung

kw,g -Gaspermeabilität bei Haftwassersättigung

k<sub>w</sub> -Wasserpermeabilität

Des Weiteren wurden ein Anstieg der Wasserpermeabilität und ein Abfall der Gaspermeabilität festgestellt. Beides lässt sich auf das Alter und die lange atmosphärische Lagerung der Kerne zurückführen. So waren die Kerne vor Beginn der Experimente noch nicht wassergesättigt, da sie durch die lange Lagerung im Kernhaus der RAG ausgetrocknet waren. Nach der Einlagerung verschoben sich durch die nun erhöhte Wassersättigung die relativen Permeabilitäten, weshalb das Gas nun langsamer und das Wasser nun schneller fließen konnten. Ein Schwellen der Tone sowie etwaige Lösungserscheinungen an Gesteinskörnern konnte weder im Dünnschliff noch in der Permeabilitätsmessung nachgewiesen werden.



Abbildung 36: Kern BA C1, (links) und Kern NU W8, (rechts); Hellfeld-Durchlicht, Bildausschnitt: 3,6 mm x 2,4 mm

In Abbildung 37 und Abbildung 38 sind Dünnschliffaufnahmen der Kerne BA C1 und NU W8 vor und nach der Einlagerung dargestellt.



Abbildung 37: Kern BA C1, Teufe: 1319.14 m, (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung), gekreuzte Polarisatoren, Bildausschnitt: 3,6 mm x 2,4 mm



Abbildung 38: Kern NU W8, (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung),gekreuzte Polarisatoren, Bildausschnitt: 3,6 mm x 2,4 mm

Da das Schwellen der Tone allerdings zeitabhängig (kinetischer Effekt) ist, kann davon ausgegangen werden, dass es hier bei längerer Einlagerung noch zu weiteren Verschiebungen kommen kann. Für die Experimente zur Reservoiralteration wurden diese Ergebnisse jedoch als hinreichend genau eingestuft, da sich die Einlagerungszeiten in etwa decken.

## 5.6 Veränderung des Lagerstättengesteins (Reservoir Alteration)

## 5.6.1 Aufgabenstellung

Wasserstoff gilt gemeinhin als hoch reaktiv. Vor allem an der Atmosphäre reagiert er schnell und auch heftig mit Sauerstoff bzw. wird aufgrund seiner hohen Diffusivität schnell verteilt. In Erdgaslagerstätten fehlt die Komponente Sauerstoff vollständig, da sie unter den dort vorherrschenden reduzierenden Bedingungen nicht stabil existieren kann sondern sofort mit den Lagerstättenfluiden reagiert. Es stellt sich aber trotzdem die Frage, ob Wasserstoff nicht anderwärtige Reaktionspartner findet. So ist aus der Literatur unter anderem die Reaktion mit Schwefel zu H<sub>2</sub>S [13] sowie die Reaktion mit Eisen zu Göthit [14] bekannt. Auch die möglichen Quereffekte durch die Pufferung von Karbonaten sowie auch der Einfluss der elementreichen Tonminerale auf das geochemische System sind ebenfalls in der Literatur beschrieben [9]. Das Thema Schwefelwasserstoff hatte natürlich in der Projektentwicklung ein besonderes Augenmerk, da dieser auf Grund seiner Eigenschaften bzw. der nicht auf diesen Fall ausgelegten Anlagen ein eindeutiges Ausschlusskriterium für weitere Versuche gewesen wäre. Theoretisch ist in den betrachteten Lagerstätten Schwefel verfügbar. Dieser ist mineralisch als Pyrit gebunden bzw. im Lagerstättenwasser als SO<sub>4</sub><sup>-</sup> gelöst. Dementsprechend wurden beim DBI Leipzig Versuche zu diesem Thema durchgeführt.

## 5.6.2 Inhaltliche Darstellung

Wie auch schon in den anderen Experimenten wurden auch hier Kerne aus repräsentativen Vergleichslagerstätten verwendet, die eine mineralogisch ähnliche Zusammensetzung wie in den RAG Gasspeichern haben.

Zur Vorbereitung wurden die Kerne geschnitten und vermessen sowie die Gas- und Wasserpermeabilitäten bestimmt. Außerdem wurden Dünnschliffe als Nullproben angefertigt, um eventuelle Lösungserscheinungen oder Anwachssäume messen und bewerten zu können. Die für den Versuch bestimmten Kerne wurden mit künstlichem Lagerstättenwasser überstaut, um sie rück zu befeuchten.



#### Abbildung 39: Durchströmungsapparat

Nach der Vorbereitung wurden die Kerne in die Durchströmungsapparatur (Abbildung 39) eingebaut, wo der Versuch unter 40°C Temperatur (Lagerstätteneigenschaft) durchgeführt wurde. Das vorgefertigte Gasgemisch von 25% H<sub>2</sub> und 75% CH<sub>4</sub> wurde über eine wassergesättigte Aktivkohle geleitet, um das durchströmende Gas feucht zu halten und eine Austrocknung der Kerne zu vermeiden. Die Kerne wurden dann für 3, 6, 10 und 12 Monate durchströmt. Die Versuche wurden unter sonst gleichen Bedingungen mit einem Gasgemisch von 75% H<sub>2</sub> und 25% CH<sub>4</sub> wiederholt.

#### 5.6.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Nach dem Öffnen der Reaktoren zeigte die erste visuelle Beurteilung der Kerne eine rötliche Verfärbung derselben, die auf eine Oxidation von Eisen hindeutet. Vermutlich hat das Eisen mit dem im künstlichen Lagerstättenwasser vorhandenen Rest-Sauerstoff reagiert. Ein Zusammenhang mit Wasserstoff konnte nicht gefunden werden, da die Rotfärbung auch in den Testreaktoren ohne Wasserstoff auftrat. Ein Biofilm konnte nicht gefunden werden, was mikrobiologische Reaktionen während der Einlagerung ausschließt.

Abbildung 40 und Abbildung 41 zeigen exemplarisch die für 12 Monate eingelagerten Kerne vor und nach der Einlagerung im Vergleich.





Abbildung 40: Kern BA C1, Teufe: 1312.97 m, (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung für 12 Monate)



Abbildung 41: Kern NU W8 (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung für 12 Monate) Nach der Entnahme der Kerne wurden wiederum die Gas und Wasserpermeabilitäten bestimmt.

Tabelle 13:Vergleich der Wasser- und Gaspermeabilitäten vor und nach der Einlagerung an<br/>den Kernen aus der Bohrung BA C1

	Wasserperme k <sub>w</sub> [m²]	eabilität	Gaspermeabilität k <sub>wg</sub> [m²]	
Monate	vor	nach	vor	nach
2	2.77 10 <sup>-14</sup>	2.86 10 <sup>-14</sup>	2.43 10 <sup>-13</sup>	2.31 10 <sup>-13</sup>
3	5.55 10 <sup>-14</sup>	3.16 10 <sup>-14</sup>	2.17 10 <sup>-13</sup>	2.57 10 <sup>-13</sup>
6	4.07 10 <sup>-14</sup>	3.75 10 <sup>-14</sup>	1.60 10 <sup>-13</sup>	1.45 10 <sup>-13</sup>
9	3.87 10 <sup>-14</sup>	2.58 10 <sup>-14</sup>	1.31 10 <sup>-13</sup>	1.11 10 <sup>-13</sup>
12	2.59 10 <sup>-14</sup>	7.19 10 <sup>-14</sup>	1.95 10 <sup>-13</sup>	1.06 10 <sup>-13</sup>
k <sub>w</sub> -	Wasserpermeabil	ität		

 $k_{w,g} \quad \ \ \text{-Gaspermeabilität bei Haftwassersättigung}$ 

Tabelle 14:Vergleich der Wasser- und Gaspermeabilitäten vor und nach der Einlagerung an<br/>den Kernen aus der Bohrung NU W8

	Wasserpermeabilität		Gaspermeabilität	
	k <sub>w</sub> [m²]		k <sub>wg</sub> [m²]	
Monate	vor	nach	vor	nach
2	5.95 10 <sup>-16</sup>	2.77 10 <sup>-16</sup>	4.10 10 <sup>-15</sup>	11.0 10 <sup>-15</sup>
3	6.27 10 <sup>-15</sup>	0.25 10 <sup>-15</sup>	4.65 10 <sup>-14</sup>	3.80 10 <sup>-14</sup>
6	3.90 10 <sup>-15</sup>	1.07 10 <sup>-15</sup>	1.94 10 <sup>-14</sup>	0.76 10 <sup>-14</sup>
9	4.48 10 <sup>-15</sup>	1.13 10 <sup>-15</sup>	2.95 10 <sup>-14</sup>	2.15 10 <sup>-14</sup>
12	1.34 10 <sup>-15</sup>	2.8 10 <sup>-15</sup>	7.68 10 <sup>-15</sup>	9.51 10 <sup>-15</sup>

k<sub>w</sub> -Wasserpermeabilität

kw,g -Gaspermeabilität bei Haftwassersättigung

Interessanterweise nahmen die Wasserpermeabilitäten bei den kurz eingelagerten Kernen ab und bei allen 12 Monate eingelagerten Kernen zu. Die Abnahme lässt sich aus den Eigenschaften der Tonminerale erklären, die bei unterschiedlichen Wassersättigungen zum Aufquellen neigen. Dabei handelt es sich um einen kinetischen Effekt, der natürlich zeitabhängig ist. Die anfängliche leichte Zunahme der Wasserpermeabilität ist über die Wassersättigung der Kerne zu erklären. Je höher die initiale Sättigung ist, desto höher wird auch die Wasserpermeabilität, da sich das Wasser durch gesättigte Poren schneller bewegt.

Wie anschließend erläutert, zeigen die Dünnschliffe (Abbildung 42;

Abbildung 43) keine Indikation, dass sich durch Lösung zusätzliche Permeabilitäten ergeben hätten.



Abbildung 42: Mäßig sortierter, feinkörniger, kalzitisch zementierter Litharenit



Abbildung 43: Übersichtsaufnahme eines porösen, gut sortierten, feinkörnigen Litharenites. Der freie Porenraum ist blaugefärbt.

Die Gaspermeabilität sank in allen verwendeten Kernen. Der Grund dafür sind die unterschiedlichen Wassersättigungen in den verschiedenen Kernen, die zum Teil sehr heterogen waren. Dadurch sank die relative Gaspermeabilität in den Kernen. Einzig in zwei NU Kernen stieg die Gaspermeabilität. Es könnte sich hierbei um eine durch die Gesteinseigenschaften hervorgerufene Anomalie handeln. Auch hier ist wieder zu erwähnen, dass sich im Dünnschliff keine Indikation für Lösungserscheinungen ergab.

Da die Ergebnisse der Permeabilitätsmessung keine eindeutigen Resultate brachten, wurden Dünnschliffe angefertigt, um eventuell Veränderungen auf mikroskopischem Niveau zu sehen.

An den Karbonatkörnern des Sandsteins wurden weder Anwachssäume durch Ausfällung noch Glättungen durch Lösung festgestellt.

In Abbildung 44 und Abbildung 45 sind exemplarisch Dünnschliffaufnahmen der Kerne 8 und 10 vor und nach der Einlagerung von 2 bzw. 12 Monaten dargestellt.



Abbildung 44: Kern BA C1, Teufe: 1310.94 m, (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung für 12 Monate), gekreuzte Polarisatoren; Bildausschnitt: 900 μm x 600 μm



Abbildung 45: Kern NU W8, (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung für 12 Monate),gekreuzte Polarisatoren; Bildausschnitt: 900 µm x 600 µm

Wie zu sehen ist, sind die Körner weiterhin scharf zueinander abgegrenzt ohne die für Lösungserscheinungen typischen Löcher zu zeigen.

Auch von Seiten der RAG wurden diese Dünnschliffe nochmals petrographisch interpretiert. An Hand der vom DBI Leipzig zur Verfügung gestellten Dünnschliffe sind keine Veränderungen nach den Versuchen erkennbar.

Weiters wurden Kerne, welche in den mikrobiologischen Experimenten der IFA Tulln verwendet wurden, der gleichen Untersuchung unterzogen. Allerdings wurden auch in diesen Untersuchungen keinerlei Veränderungen in der Permeabilität, Porenstruktur oder mineralogischen Zusammensetzung festgestellt.

In ähnlichen Untersuchungen (H<sub>2</sub>Store) wurden teils signifikante Lösungserscheinungen bei den Karbonaten der Sandsteine gemessen. Der Autor nimmt an, dass dies jedoch nicht ein Effekt des Wasserstoffes ist, sondern vielmehr mit den bei diesem Projekt vorherrschenden Testbedingungen zu tun hat (höhere Temperaturen, niedrigere pH-Werte, signifikant höhere Salinität). Die hohen Temperaturen implizieren natürlich auch eine viel höhere Energie im System die in weiterer Folge auch ganz ohne das Zutun von Wasserstoff zu Reaktionen führen können.

Für das Projekt Underground Sun Storage wurde eine separate Versuchsreihe gemacht, die sich mit dem Einfluss des künstlichen Lagerstättenwassers auf die Kerne beschäftigt (0). Ähnliche Versuche oder zumindest deren Ergebnisse liegen für das H<sub>2</sub>Store Projekt leider nicht vor. Entsprechend kann nur gemutmaßt werden, ob die im H<sub>2</sub>Store gemessenen Veränderungen auf Wasserstoff oder auch auf das künstliche Lagerstättenwasser zurückzuführen sind.

Es kann also abschließend gesagt werden, dass für die bei der RAG vorherrschenden Lagerstättenbedingungen keinerlei messbare geochemische Veränderungen beobachtet werden konnten. Diese aus Betreibersicht sehr positiven Ergebnisse waren für die Planung und Durchführung des Feldversuches sehr wichtig.

## 5.7 Geochemische Simulation

### 5.7.1 Aufgabenstellung

Dem Thema Geochemie wurde von Beginn an ein hoher Stellenwert zugewiesen, da Wasserstoff gemeinhin als hoch reaktiv gilt und auch in der Literatur die Annahme vertreten wird, dass es zu signifikanten Reaktionen in der Lagerstätte kommen wird.

### Montanuniversität Leoben Department Reservoir Engineering

Im Rahmen dieser Arbeiten wurden mögliche Reaktionen und Integrität der erschöpften Gaslagerstätten, im oberösterreichischen Molassebecken, in Bezug auf die Injektion von Wasserstoff geprüft. Dabei werden mögliche Wasserstoff Verlustquellen untersucht, die mit geochemischen Gleichgewichts- und Transportprozessen verbunden sind. Da die Zeitskalen chemischer Reaktionen und Transportphänomene gut getrennt sind, wurden getrennte geochemische- und Transport-Modellierungsstudien durchgeführt, um Wasserstoffverwertungspfade abzuschätzen. Ein geochemischer Workflow wurde entwickelt, um die Fluid-Fluid und Gesteins-Fluid Interaktionen aufgrund der Wasserstoff Injektion innerhalb des Zeitraums eines Speicherzyklus vorauszusagen und den endgültigen Verbleib des Wasserstoffs zu untersuchen.

Innerhalb der geochemischen Studie haben wir einen Mehrstufen Zugang entwickelt und durchgeführt um Gleichgewichts und kinetische "Batch" Simulationen zu studieren. Angemessene Annahmen wurden für jede Art von Model berücksichtigt. Gleichgewichts "Batch Modelle" schätzen Langzeit Konsequenzen von Wasserstoffspeicherung ab (was passiert mit dem Wasserstoff, wenn das Reaktionspotential eines Systems null ist). Dahingegen schätzen kinetische "Batch Modelle" die zeitliche Entwicklung ab und machen eine Aussage über den Verlust während eines Speicherzyklus möglich. Zwei Schritte wurden in den kinetischen "Batch Modellen" berücksichtigt. In den ersten kinetischen Modellen werden Mineralreaktionen kinetisch kontrolliert während Wasserstoffreaktionen als im Gleichgewicht angenommen werden. Im zweiten kinetischen "Batch Model", werden Wasserstoffreaktionen in Lagerstättenwasser als kinetisch kontrolliert angesehen. Die Ergebnisse zeigen, dass Reaktionen zwischen dem injizierten Wasserstoff und der Formation innerhalb eines typischen Speicherzyklus unbedeutend sind.

### RAG

Auch von RAG wurde eine geochemische Simulation durchgeführt, wobei jedoch mit einer schon vorhandenen und verfügbaren Software gearbeitet wurde. Konkret wurde die Open Source Software Phreeqc [T] verwendet, um auch anderen Speicherbetreibern die Möglichkeit geben zu können, mit ihrem geologischen Input die Ergebnisse von Underground Sun Storage abgleichen zu können. Es sollte ermöglicht werden, mittels Wasser, Temperatur und Gesteinsdaten, schnelle Aussagen machen zu können, ob andere Formationen für die Speicherung von Wasserstoff geeignet sind. Als Vorarbeit wurde eine Masterarbeit durchgeführt, in der mit dem Simulator GEMS [T] statische Batchversuche simuliert wurden, um ein grobes Verständnis der geochemischen Vorgänge im Untergrund zu bekommen [15].

Diese Simulationen zeigten einige mögliche Reaktionen des Wasserstoffes mit den Karbonaten der Lagerstätte sowie einen möglichen Anstieg des pH-Wertes durch die Lösung von Wasserstoff in Wasser auf. Auch eine mögliche Entstehung von H<sub>2</sub>S wurde behandelt und einige aus der Literatur bekannten Experimente (z.B. Pyrit Experiment von Truche [13]) wurden zur Verifizierung des Modells durchgeführt. Dieses statische Modell konnte jedoch keine Aussage zu der Dauer einer Reaktion geben, da der Code nicht in der Lage war, Reaktionskinetik zu berücksichtigen. Mit Phreeqc wurden zunächst die statischen Versuche wiederholt, um sicher zu gehen, dass die in der Masterarbeit erarbeiteten Ergebnisse auch von Phreeqc dargestellt werden können.

## 5.7.2 Inhaltliche Darstellung der statischen Simulation RAG

Es wurden eine Reihe von Simulationen durchgeführt, um den Gleichgewichtszustand eines Systems nach (theoretisch) unendlich langer Zeit zu ermitteln (statische Simulation) und eine Aussage über die hier auftretenden Effekte zu manchen. Außerdem wurde eine Sensitivity Analysis durchgeführt, um den Einfluss verschiedener Faktoren auf den Gleichgewichtszustand festzustellen.

## 5.7.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen der statischen Simulation RAG

Die Ergebnisse für die Simulation eines variierenden H<sub>2</sub>-Anteils im Gas sind im nächsten Diagramm abgebildet (Abbildung 46).



### Abbildung 46: H<sub>2</sub>-Sensitivität

Man kann klar erkennbare Trends beobachten. Die Molalitäten von  $H_2$  und  $H_2S$  sinken paradoxerweise bei erhöhtem  $H_2$ -Anteil, während die Molalität von  $CO_2$  in etwa gleichbleibt. Bei den Ausreißern um 20%  $H_2$ -Anteil kann es sich um ein begrenztes Phänomen oder um numerische Fehler handeln. Eine genauere Analyse des betroffenen Bereichs (10% bis 34%  $H_2$  im Wasserstoff) deutet auf numerische Fehler hin (Abbildung 47). Während die Trends klar erkennbar und annähernd linear sind, gibt es einige Ausreißer.



Abbildung 47: Numerische Fehler

Die Ergebnisse der Simulation eines variierenden Pyrit-Anteils im Gestein sind im nächsten Diagramm abgebildet (Abbildung 48).



#### Abbildung 48: Pyrit-Sensitivität

Kein klarer Trend ist bei den Molalitäten erkennbar. Ein Auftreten numerischer Fehler aufgrund der Oszillationen der Werte ist denkbar. Aussagekräftiger ist das nächste Diagramm (Abbildung 49).



Abbildung 49: Pyrit-Sensitivität II

Die Mole Pyrit im Equilibrium sind bei jedem Prozentsatz Pyrit im Gestein praktisch ident mit der Stoffmenge im Ausgangsgestein. Das bedeutet, unabhängig vom Pyritanteil bleibt dieses Gestein inert.

Phreeqc ermöglicht es, Stoffe (fest oder gasförmig) anzugeben, von denen man qualitativ annimmt, dass sie im Zuge der Reaktion anfallen. Die Software trimmt die Numerik dann derart, dass diese Stoffe auch tatsächlich im Equilibrium entstehen. Dieser Prozess wurde für gasförmiges H<sub>2</sub> durchgeführt. Es stellte sich heraus, dass dafür eine große Stoffmenge notwendig ist. Das folgende Diagramm gibt Aufschluss über den Grenzwert, an dem gasförmiges H<sub>2</sub> im Equilibrium auftritt (Abbildung 50).



### Abbildung 50: Grenzwert H<sub>2</sub>(g)

Der Grenzwert, der für die Bildung von gasförmigen H<sub>2</sub> notwendig ist, liegt bei etwa 50 Mol H<sub>2</sub> in der Ausgangsmischung. Es sollte allerdings bedacht werden, dass diese Werte sich auf 1 Liter Porenvolumen beziehen, das laut idealem Gasgesetz lediglich etwa ein Mol Gas aufnehmen kann (Wassersättigung und übrige Annahmen laut Standardfall; Temperatur und

Druck konstant). In der Realität würde man Druck und Temperatur im System bei einem solchen Einpressen (sofern es überhaupt möglich ist) erheblich verändern. Jedoch zeigt diese Simulation, dass im Equilibrium unter realistischen Bedingungen niemals gasförmiger Wasserstoff vorhanden sein kann.

Das Equilibrium ändert sich erheblich, wenn man annimmt, dass weder Calcit noch Dolomit im Gestein vorhanden sind (die Stoffmenge der anderen Mineralien steigt proportional). Am deutlichsten zeigen sich die Änderungen beim Grenzwert für die Entstehung gasförmigen Wasserstoffs im Equilibrium (Abbildung 51).



#### Abbildung 51: Grenzwert H<sub>2</sub>(g) ohne Calcit und Dolomit

Dieser Schwellwert zeigt sich auch deutlich in der Änderung des pH-Werts (Abbildung 52).



# Abbildung 52: pH-Wert als Funktion der zugefügten Stoffmenge $H_2(g)$ , ohne Calcit/Dolomit im Gestein

Sollte man den Siderit auch noch aus der Ausgangslösung entfernen, kann man diesen Effekt noch deutlicher erkennen. Der Grenzwert, der für gasförmigen Wasserstoff notwendig ist, verschiebt sich noch weiter nach links (weniger als 1 Mol). Es ist auch möglich, Stoffbilanzen für einzelne Atome zu erstellen. So ist zum Beispiel feststellbar, dass Calcium-Atome im Equilibrium nur in Lösung und in den Mineralien Calcit und Dolomit vorkommen.

Unter realistischen Bedingungen findet sich in allen Simulationen im Standardfall kein gasförmiger Wasserstoff im Gleichgewicht. Da Wasserstoff ein hoch reaktiver/hoch diffuser Stoff ist, ist dieses Ergebnis realistisch. Die Molalität von gasförmigem Wasserstoff in der Lösung ist vergleichsweise gering. Pyrit wird im System nie gelöst, egal in welcher Konzentration es im Ausgangsgestein vorhanden war.

Praktisch werden die beschriebenen Effekte jedoch in der Lagerstätte kaum messbar sein, da sie bei den vorherrschenden Bedingungen einfach zu langsam ablaufen. So ist speziell die niedrige Temperatur von nur 40°C ein Hemmnis, da das System viel zu wenig Energie enthält um die nur leicht exothermen Reaktionen zu starten. Dies konnte auch mit den Laborversuchen der IFA Tulln und des DBI Leipzig verifiziert werden.

## 5.7.4 Dynamische Simulation RAG

Um detailliertere und aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten, ist es zielführend, dynamische Simulationen durchzuführen. Diese geben Aufschluss über den zeitlichen Ablauf der chemischen Reaktionen und nicht nur über das geochemische Equilibrium. Da in der Natur der Gleichgewichtszustand de facto nie erreicht wird, ist vor allem die erste Phase der Reaktionen relevant. Hier sind im Allgemeinen auch die Reaktionsgeschwindigkeiten am höchsten. Aufgrund der Komplexität dynamischer Prozesse sind für derartige Simulationen eine Reihe von Laborexperimenten sowie eine belastbare kinetische Datenbank notwendig. Aus [15] war bereits bekannt, dass besonders für Tonminerale kaum belastbare kinetische Modelle und Werte vorhanden sind. Leider können diese nicht so einfach weggelassen werden, weil sie zum Teil einen signifikanten Anteil an Eisen enthalten, welches auch zur Reaktion mit Wasserstoff zu FeOOH (Göthit) neigt. Außerdem war auch die Datenlage für Ferrokalzit sehr dürftig, der offensichtlich dasselbe Thema aufwirft wie die Tone.

Da das geochemische System außerdem sehr komplex ist, wäre ein großer Programmieraufwand notwendig, um alle etwaigen Reaktionen im System dazustellen und zu bewerten. Zu einem gewissen Zeitpunkt musste leider eingestanden werden, dass der Aufwand ein belastbares Model zu generieren, den Rahmen des Projektes bei weitem gesprengt hätte.

Zu guter Letzt wäre es auch nicht möglich gewesen, die Ergebnisse der Simulation zu verifizieren. Weder in den Laborversuchen noch in den Feldversuchen konnten, bis auf den Anstieg des pH-Wertes, Reaktionen festgestellt werden. Die entsprechend fehlende Grundlage machte eine geochemische Simulation unmöglich, weswegen diese leider aufgegeben werden musste.

## 5.7.5 Inhaltliche Darstellung der Simulationen MUL

Als Teil der Wasserstoffspeicher Machbarkeitsstudie, wird ein mehrstufiger Workflow vorgeschlagen um das Verhalten des geochemischen Systems in der Anwesenheit von Wasserstoff zu charakterisieren. Der Workflow ist in Abbildung 53 gezeigt. In diesem Ansatz werden verschiedene Modellierungsschritte vorgeschlagen um die Kurz- und Langzeit Auswirkungen des Wasserstoffes auf das Reservoir zu untersuchen. Passende Annahmen wurden für alle Abschnitte der Modellierung gemacht. Die Modellierungsschritte sind: (1) das Gleichgewichts "Batch Model", das augenblickliche Reaktionen (Gleichgewicht) für Wasserstoff und Minerale annimmt; (2) das primäre kinetische "Batch Model", welches

Mineralreaktionen als kinetisch kontrolliert betrachtet, während angenommen wird, dass Wasserstoffreaktionen beim lokalen thermodynamischen Gleichgewicht auftreten; dieser Abschnitt besteht aus zwei Modellierungsschritten. Im ersten Model, wurden die Daten zu den Mineralreaktionen aus der Literatur verwendet. Im zweiten Schritt wurde angenommen, dass Reaktionen von Pyrit und Pyrrhotit im Gleichgewicht stattfinden. Der Grund dafür sind experimentelle Befunde [16], die darauf hinweisen, dass diese Reaktionen in Anwesenheit von Wasserstoff relativ schnell sind, während die meisten Literaturdaten dies nicht berücksichtigen. Weitere Diskussionen stehen im Ergebnisteil. Der letzte Schritt (3) ist das finale "Batch Model, in dem Mineral- und Wasserstoffreaktionen als kinetisch kontrolliert angesehen "Empfindlichkeitsanalyse" der werden. Eine Wasserstoffreaktionsrate (niedrig/mittel/hoch) und die Annahme, dass ein Gleichgewicht/Ungleichgewicht für Redox-Paare vorliegt, wurde gemacht um ihren Einfluss auf die Ergebnisse zu untersuchen.



# Abbildung 53: Vorgeschlagener geochemischer Modellierungs-workflow, wie im Text beschrieben.

Die generellen Befunde der geochemischen Modellierung zeigen, dass Wasserstoff mit Lagerstättenwasser und Formationsgestein unter bestimmten Bedingungen und Annahmen, die zu einem teilweisen Verlust von Wasserstoff führen, reagieren kann. Es gibt einige Unsicherheiten aufgrund des Mangels an experimentellem Wissen. Diese Studie könnte als Richtlinie für weitere experimentelle Untersuchungen (z.B.: experimentelle Quantifizierung von Reaktionen in Hinsicht auf die kinetische Reaktionsgeschwindigkeit unter Anwesenheit von Wasserstoff, kinetische Wasserstoffreaktionsraten in Lagerstättenwasser) dienen.

### Statische Simulation MUL

Wie oben vorgeschlagen, werden im ersten Schritt, alle möglichen Reaktionen in den verschiedenen physikalischen Phasen unter der Gleichgewichtsannahme für Wasserstoff-Lagerstättenwasser-Mineral-Reaktionen identifiziert. Die Ergebnisse des Modells deuten darauf hin, dass Wasserstoff die Integrität des Reservoirs beträchtlich beeinflussen kann. Ist genug Zeit gegeben, sodass alle Reaktionen stattfinden (z.B.: Karbonatauflösung/-ausfall, Redoxreaktionen und wässrige Speziirung), so resultiert dies in einer substantiellen pH-Wert Erhöhung. Die CH<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, HS<sup>-</sup>-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, und CH<sub>4</sub>-CH<sub>3</sub>COO<sup>-</sup> Redox-Paare sind die Hauptsenken für Wasserstoff (Verbrauch) im System. Des Weiteren beeinflusst die

Anwesenheit von H<sub>2</sub> in diesem System die thermodynamische Stabilität von Pyrit und die Redoxreaktion, in der Pyrit zu Pyrrhotit reduziert wird.



Abbildung 54: Entwicklung des pH-Werts statischen Gleichgewichtsmodel als Funktion der injizierten Wasserstofffugazität.

#### **Dynamische Simulation MUL**

Im nächsten Abschnitt werden kinetische Reaktionsparameter für primäre und sekundäre Mineralien im grundlegenden kinetischen Modell einbezogen. Die CH<sub>4</sub>-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> und CH<sub>4</sub>-CH<sub>3</sub>COO<sup>-</sup> Redox-Paare sind entkoppelt um realistische Bedingungen zu erreichen. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass geochemische Reaktionen von H<sub>2</sub> mit Mineralien generell langsame kinetische Reaktionsraten aufweisen, was auch in der Literatur bestätigt wird. Nichtsdestotrotz sind die kinetischen Parameter meist in Abwesenheit von Wasserstoff generiert; folglich ist eine Unsicherheit in Anbetracht dieser Raten zu berücksichtigen, besonders für die Reduktion von Pyrit zu Pyrrhotit, die bei niedrigen Temperaturen in Anwesenheit von Wasserstoffgas signifikant sein kann [16]. Eine Fallstudie, in der Reaktionen von Pyrit-Pyrrhotit als im Gleichgewicht betrachtet wurden, schätzt ab, welche der gefundenen Wasserstoffreaktionen mit diesen Mineralien schnell genug sind, um den pH-Wert des Systems effektiv zu erhöhen. Das letzte Modell ist am relevantesten für die Anwendung auf Untergrund-Wasserstoffspeicherung.



Abbildung 55: Änderung der Mineralzusammensetzung während eines Injektionsjahres mit einem  $H_2$ -Partialdruck von 7.5 bar (Grundlegendes kinetisches Model basierend auf dem anfänglichen System von Fallstudie 3 und unter der Annahme das Reaktionen von Pyrit und Pyrrhotit im Gleichgewicht sind).


Abbildung 56: Veränderung des pH-Werts (Grundlegendes kinetisches Model basierend auf dem anfänglichen System von Fallstudie 3 und unter der Annahme das Reaktionen von Pyrit und Pyrrhotit im Gleichgewicht sind).

#### Endgültiges kinetisches "Batch Model"

Im letzten Abschnitt der geochemischen Modellierung wurde die Kinetik von Wasserstofflöslichkeit zum Modell hinzugefügt. Aufgrund des Mangels an Daten für Wasserstoff-Lösungs-Reaktionen, haben wir einige Szenarien definiert um zu verstehen, unter welchen Bedingungen die Wahrscheinlichkeit von Wasserstoffverlust bedeutend ist. Des Weiteren haben wir die gleichen Modelle mit Fällen verglichen, in denen die Reaktionen von Redox-Paaren im Gleichgewicht blieben. Wenn Annahmen von sowohl kinetischen als auch Gleichgewichtsreaktionen von Redox-Paaren gemacht werden und die Wasserstoffreaktionsrate gering bleibt, ist der pH-Wert Anstieg klein, und Wasserstoff verhält sich wie ein inertes Gas. Im Fall moderater bis hoher Wasserstoff Reaktionsraten, wird eine größere pH-Wert Erhöhung beobachtet; nichtsdestotrotz bleibt diese Menge unbedeutend wenn ein Ungleichgewicht für Redox-Paar-Reaktionen angenommen wird und ist beträchtlich im Fall einer Gleichgewichtsannahme für diese Reaktionen.

## Tabelle 15: Sensibilitätsanalyse kinetischer Reaktionsparameter für Wasserstoffreaktionen; drei Reaktionsgeschwindigkeiten (hoch, mittel und langsam) wurden unter Veränderung der spezifischen Reaktionsflächen und der äußerlichen Wasserstoff Fugazität getestet (nach 12 Monaten mit einer Fugazität von 7.5 bar).

	Wasserstoff	pH Anstieg					
Case	Reaktionsrate* Oberfläche (mol/(kg Wasser s))	Blockieren der redox Paare und der CH <sub>4</sub> Bildung	Annahme eines Gleichgewichts der redox Paare				
Hohe H <sub>2</sub> Reaktionsrate	1E-07	0.1148	3.67				
Mittlere H <sub>2</sub> Reaktionsrate	1E-10	0.1148	2.88				
Niedrige H <sub>2</sub> Reaktionsrate	1E-13	0.0191	0.0039				

## 5.7.6 Ergebnisse und Schlussfolgerungen MUL

Zusammenfassend konnte ein geochemischer Workflow entwickelt werden, der potentielle geochemische Prozesse untersucht und quantifiziert, welche zu einem potentiellen Wasserstoffverlust in Porenlagerstätten führen kann. Die geochemischen Prozesse wurden sowohl statisch als auch dynamisch bei konstantem Druck und konstanter Temperatur modelliert. Die Modellierungsmethode berücksichtigt sowohl die standortspezifische Mineralogie als auch kinetische Reaktionsraten, die aus der Literatur entnommen wurden. Außerdem besteht eine Kopplung zu schnellen Gleichgewichtsprozessen, wie zum Beispiel wässrige Speziationsreaktionen. Um Kurz- und Langzeit Einflüsse des Wasserstoffes auf das Reservoir zu prüfen, wurden verschiedene geochemische Modelle mit verschiedenen Zusammensetzungen simuliert.

Aus den Modellierungsergebnissen kann geschlossen werden, dass der Hauptgrund der pH-Wert Erhöhung und damit eines Wasserstoffverlustes, in der Gleichgewichtsannahme unter Redox-Paaren und der Pyrit-Reduktion zu Pyrrhotin liegt. Die Frage, ob ein lokales Gleichgewicht für Redox-Paare eine angemessene Annahme ist, muss durch weitere experimentelle Untersuchungen der entsprechenden Reaktionen und Daten geklärt werden. Die abiotische Wasserstoff Redoxreaktion ist kinetisch beschränkt und viele der wasserstoffinduzierten Redoxreaktionen tendieren dazu, bei niedrigen Temperaturen vernachlässigbar zu sein. Die Ausnahme für wasserstoffinduzierte Redoxreaktionen ist Pyrit-Reduktion zu Pyrrhotin, die bereits bei niedrigen Temperaturen signifikante Reduktionsraten aufweist. Alkalische pH-Bedingungen könnten Pyrrhotin-Ausfällung weiter unterstützen. Allerdings war die Quantifizierung, wie viel Wasserstoff aufgrund geochemischer Reaktionen verloren geht, außerhalb des Rahmens dieser Arbeit.

Angesichts der vollen Bandbreite an Unsicherheiten, die hauptsächlich von dem Mangel an verlässlichen kinetischen Daten verursacht wurde, sind der Verlust von Wasserstoff sowie die Beeinflussung der Lagerstättenparameter durch Wasserstoff nicht ganz auszuschließen. Das potentielle Risiko eines Wasserstoffverlustes steigt, wenn angenommen wird, dass die Redox-Paar-Reaktionen im Gleichgewicht sind. Die in diese Arbeit verwendeten Reaktionsraten, die aus Literaturdaten entnommen wurden, sind hauptsächlich aus Laborexperimenten abgeleitet. Es ist wichtig anzumerken, dass bei realen Anwendungen die Reaktionsraten meist mehrere Größenordnungen kleiner sind als die Laborwerte. Folglich kann für den Feldtest eine nur mäßige Beeinflussung im Vergleich zu den Laborwerten angenommen werden. Zusammengefasst soll dieses Arbeitspaket nicht nur als Simulation, sondern auch als Beitrag zum Risiko-Assessment dienen.

# 5.8 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

Nr.	Studie/Bericht/ Präsentation	Jahr	Autor
1	Power to Gas: Technology and Business Models. Springer	2014	Lehner et al
	Briefs in Energy, Cham, S. 16.		
2	Podiumsdiskussion Wirtschaftsfaktor Erdgas – Zukunft des	2015	Lehner
	Marktes, Wien		
	http://www.report.at/energie/aufmacher/item/88152-kurzbericht-		
	podiumsgespraech-wirtschaftsfaktor-erdgas-zukunft-des-		
	marktes		
3	GeoTirol Präsentation: Underground Sun Storage; A study on	2016	Pichler
	properties of hydrogen admixture in porous Underground Gas		
	Storage facilities by means of an in-situ experiment		
4	SPE Chapter Meeting Leoben und SPE Vienna: Präsentation	2016	Pichler
	der Ergebnisse der geochemischen Versuche.		
5	Wasserstoff Verträglichkeit in Porenspeichern; DVGW Bericht in	TBD	Bauer et al
	Vorbereitung		
6	Underground Sun Storage:	2014	Bauer et al
	Erneuerbare Energie untertage speichern. DVGW energie		
	wasser-praxis, 9:50–54,		
7	Underground Sun Storage: Ein Projekt zur Erforschung	2017	Bauer;
	der Wasserstoffverträglichkeit von Erdgasporenspeichern.		Pichler
	DVGW energie   wasser-praxis,		
	8:64–69		
8	DBI Abschlussberichte: Deckgebirge, Zement,	2016	Lubenau;
	Lagerstättenwasser		Rockmann
9	DBI Abschlussbericht: Reservoiralteration bei 25 und 75 Vol%	2017	Lubenau:
	Anteil H2 im Erdgas		Rockmann
10	DBI Bericht Änderung der Eigenschaften von Gasen durch	2014	Lubenau
	Beimengung von Wasserstoff		

# 5.9 Literaturverzeichnis

- [1] Chen und e. al, Binary Gas Diffusion of Methane-Nitrogen Through Porous Solids, Michigan, US: AIChE Journal (Vol. 23, No. 3), 1977.
- [2] B. S. Srinivasan, "THE IMPACT OF RESERVOIR PROPERTIES ON MIXING OF INERT CUSHION AND NATURAL GAS IN STORAGE RESERVOIRS," Department of Petroleum & Natural Gas Engineering, College of Engineering and Mineral Resources, West Virginia University, Morgantown, West Virginia, US, 2006.
- [3] Paterson, "THE IMPLICATIONS OF FINGERING IN UNDERGROUND HYDROGEN STORAGE," Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 8, No. 1, pp. 53-59, 1983/ International Association for Hydrogen Energy, Canberra, Australia, 1982.

- [4] S. Gier, "DIAGENESE PELITISCHER SEDIMENTE IN DER MOLASSEZONE OBER.STERREICHS," Österreichische Mineralogischen Gesellschaft, Wien, 1998.
- [5] G. Homsey, "Viscous Fingering in Porous Media," Department of Chemical Engineering, Stanford University, Stanford, 1987.
- [6] Paterson, "THE IMPLICATIONS OF FINGERING IN UNDERGROUND HYDROGEN STORAGE," Int. J. Hydrogen Energy, Vol. 8, No. 1, pp. 53-59, Great Britain, 1982.
- [7] Lucia, "Measurements of H<sub>2</sub> solubility in saline solutions under reservoir conditions: preliminary results from project H<sub>2</sub>STORE," European Geosciences Union General Assembly, Potsdam, 2015.
- [8] Y.-L. Wang, "Wettability Alteration of Sandstone by Chemical Treatments," Hindawi Journal of Chemistry, China, 2013.
- [9] Lassin und e. al, Hydrogen solubility in pore water of partially saturated argillites: Application to Callovo-Oxfordian clayrock in the context of a nuclear waste geological disposal, Fontenay-aux-Roses, France: Physics and Chemistry of the Earth 36 (2011) 1721–1728, 2011.
- [10] K. Taeyoun, H. Seho und J. Seonghyung, "Petrophysical approach for estimating porosity, clay volume, and water saturation in gas bearing shale: A case study from the Horn River Basin, Canada," Austrian Journal of Earth Science, Vienna, 2016.
- [11] P. Carden und L. Paterson, Physical, Chemical and Energy Aspects of Underground Hydrogen Storage, Bd. Vol. 4, I. A. f. H. Energy, Hrsg., Canberra: International Journal Hydrogen Energy, 1979.
- [12] A. Hoch und M. James, "Gas Migration and Rock-matrix Diffusion in Higher Strength Rocks," AMEC/000450/001, Issue 4, Harwell Oxford, 2013.
- [13] Truche, "Experimental reduction of aqueous sulphate by hydrogen under hydrothermal conditions: Implication for the nuclear waste storage," Elsevier, Geochimica et Cosmochimica Acta 73 (2009) 4824–4835, 2009.
- [14] Garrels et al, Solutions Minerals and Equilibira, Freeman, Cooper & Co, 1995.
- [15] M. Pichler, Assessment of Hydrogen Rock Interaction During geological Storage of CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> Mixtures, Bd. Master Thesis, Leoben: Montanuniversität Leoben, 2013.
- [16] S. Betelu, C. Lerouge, G. Berger, E. Giffaut und I. Ignatiadis, "Mechanistic and kinetic study of pyrite (FeS<sub>2</sub>)-hydrogen (H<sub>2</sub>) interaction at 25°C using electrochemical techniques," BRGM, France, 2015.

# 5.10 Kontaktdaten

ROHÖL AUFSUCHUNGS AKTIENGESELLSCHAFT Department UGS Entwicklung und Management Schwarzenbergplatz 16 1015 Wien +43(0)50724-0 www.rag-austria.at

#### MONTANUNIVERSITÄT LEOBEN

Univ.-Prof. Dr.-Ing. Markus Lehner Lehrstuhl für Verfahrenstechnik des industriellen Umweltschutzes Department Umwelt- und Energieverfahrenstechnik Montanuniversität Leoben Franz-Josef-Str. 18 A-8700 Leoben, Austria http://vtiu.unileoben.ac.at vtiu@unileoben.ac.at Phone: +43 3842 402-5001 Fax: +43 3842 402-5002

#### MONTANUNIVERSITÄT LEOBEN

Univ.-Prof. Dipl.-Phys. Dr.rer.nat. Holger Ott Lehrstuhl für Reservoir Engineering Department Petroleum Engineering Montanuniversität Leoben Parkstraße 27 A-8700 Leoben, Austria Mail: holger.ott@unileoben.ac.at Phone: +43 43 3842 402 3000

Autoren: Dipl.-Ing. Fritz Kittinger, Dipl.-Ing. Markus Pichler, Dipl.-Ing. Neda Hassannayebi

# 6 Mikrobiologische Prozesse in Wasserstoffbeaufschlagten Reservoirs

In diesem Kapitel werden Resultate der am Institut für Umweltbiotechnologie (IFA-Tulln) durchgeführten Laborversuche zusammenfassend dargestellt. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse dienten als wichtige Grundlage für die Durchführung des Feldversuchs (siehe Kapitel 9).

# 6.1 Aufgabenstellung

In diesem Arbeitspaket sollte das im Testfeld vorhandene mikrobiologische Konsortium charakterisiert und die hydrochemischen Eigenschaften des Formationswassers bestimmt werden. In weiterer Folge sollte untersucht werden, wie das vorgefundene mikrobiologische Konsortium auf Wasserstoff-Exposition reagiert, ob Wasserstoff-umsetzende Prozesse auftreten und wie diese zu verhindern sind.

# 6.2 Inhaltliche Darstellung

## 6.2.1 Versuchsaufbau

Ein zentraler Punkt war, die im Erdgasspeicher (Testfeld) vorliegenden Bedingungen im Labor nachzustellen. Hierzu wurden zehn Hochdruck-Bioreaktoren eingesetzt. Diese wurden aus einer speziellen Stahlqualität hergestellt, die geeignet ist für Wasserstoff-Exposition, und korrosionsbeständig erhöhte Salinität die gegen (Lagerstättenwasser) sowie Schwefelwasserstoff ist. In diesem Zusammenhang ebenfalls zu berücksichtigen war die Auswahl geeigneter Dichtungsmaterialen. Zusätzlich waren alle gesetzlichen Sicherheitsbestimmungen für den Umgang mit gasförmigen Wasserstoff zu erfüllen. Vor dem Versuchsstart erfolgte eine TÜV-Abnahme der Reaktoren und damit einhergehend eine Berechnung nach ATEX (explosive Atmosphären) für den vorgesehenen Aufstellungsort. Aufgrund dieser Vorgaben konnten die Hochdruck-Bioreaktoren bei max. 55 bar und max. 45°C betrieben werden. Der gewählte Betriebsdruck von 45 bar liegt zwar unterhalb des Einspeicherungsdrucks für das Testfeld (80 bar), jedoch sind durch Wasserstoff-Exposition verursachte mikrobiologische Prozesse auch schon bei den gewählten Versuchsbedingungen zu erwarten. In Abbildung 57 ist ein Reaktor schematisch dargestellt, Abbildung 58 ist eine Detailaufnahme eines Reaktors in Abbildung 57: Schema mit den angebrachten Armaturen (Nadelventil, Berstscheibe, Drucksensor) zu sehen. In 59 sind alle Reaktoren im Betriebszustand mit der aufgrund der Abbilduna Betriebstemperatur von 45°C erforderlichen Isolierung zu sehen.



Quelle: MAL

Abbildung 57: Schema

Quelle: BOKU Wien

Abbildung 58: Reaktorkopf mit Armaturen



Abbildung 59: Isolierte Hochdruck-Bioreaktoren



#### 6.2.2 Versuchsmaterialien

Für die erfolgreiche Simulation des Testfeldes bzw. Erdgasspeichers in Bioreaktoren waren neben der Annäherung des Druckes und der vorherrschenden Temperatur folgende Komponenten erforderlich: (i) frisches **Lagerstättenwasser** (siehe Abbildung 60) gewonnen vom Testfeld im Herbst 2013, (ii) **Bohrkerne** einer biogenen Erdgaslagerstätte – es wurden Bohrkerne einer Erdgaslagerstätte eingesetzt, welche eine zum Testfeld sehr ähnliche mineralogische Verteilung aufwiesen und die der gleichen geologischen Schichtung (Haller

Serie) entstammen (siehe Abbildung 61). (iii) Um eine Wasserstoff-Exposition in Gegenwart von Erdgas zu simulieren, waren entsprechende **Gasgemische** erforderlich. Dazu wurden Mischungen von Wasserstoff in Methan mit einem Wasserstoffgehalt von 4-10% (v/v) eingesetzt.



Quelle: BOKU Wien (RAG)

Abbildung 60: Lagerstättenwasser

# 

Quelle: BOKU Wien (RAG)

## Abbildung 61: Bohrkern

# 6.2.3 Untersuchungsmethoden

# 6.2.3.1 Hydrochemische Analysen

Zur Bestimmung von **pH** Wert, **Redoxpotential** (mV) und **Leitfähigkeit** (mS/cm) wurde ein Messgerät von HACH (*HQ40d multi base unit*), ausgerüstet mit folgenden Sensoren, eingesetzt: pH -*HACH IntelliCAL PHC101 Standard Gel Filled pH Electrode*, Redoxpotential -*HACH IntelliCAL MTC301 Standard Refillable ORP Electrode*, Leitfähigkeit - *HACH IntelliCAL CDC401 standard conductivity probe*.

Gelöstes Chlorid (CI), Nitrat (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>), Sulfat (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) und Phosphat (PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>) wurden mittels Ionen Chromatographie (THERMOFISHER *Scientific Dionex ICS 900*) quantifiziert. Für die Bestimmung der gelösten Gehalte an **Eisen** (Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup>), Ammonium (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) und Kohlendioxid (CO<sub>2</sub>) wurden *Dr. LANGE* Küvettentests eingesetzt. Die Bestimmung des TOC (gesamter organischer Kohlenstoff), TIC (gesamter inorganischer Kohlenstoff) und TC (Gesamtkohlenstoff) erfolgte mit einem TOC Analyzer von SHIMADZU (*TOC-V CPH*). Die Elemente AI - Aluminium, As - Arsen, Ba - Barium, Ca - Kalzium, Cd - Cadmium, Co -Kobalt, Cr - Chrom, Cu - Kupfer, Fe - Eisen, K - Kalium, Mg - Magnesium, Mn - Mangan, Mo - Molybdän, Na - Natrium, Ni - Nickel, P - Phosphor, Pb - Blei, S - Schwefel, Se - Selen, Zn -Zink wurden mit einem *HORIBA Ultima Expert ICP-OES* Spektrometer bestimmt.

# 6.2.3.2 Gasanalysen

Methan, Kohlendioxid, Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff wurden mit einer modifizierten AGILENT 7890a Gaschromatographie ausgestattet mit einem FID

(Flammenionisationsdetektor) und einem PDD (pulsed discharge ionization detector) bestimmt. Zur Auftrennung des Gasgemisches wurde eine Kombination folgender Säulen eingesetzt: *PlotQ15 Agilent 19095P-Q03, PlotMS Agilent 19095P-MS6, PlotQ30 Agilent 19095P-Q04.* 

Gaskomponenten wie **Schwefelwasserstoff**, **Essigsäure** und **Kohlenmonoxid** wurden mit *Dräger-Röhrchen*® bestimmt.

## 6.2.3.3 Molekularbiologische Analysen

Zur Bestimmung des mikrobiologischen Konsortiums im Lagerstättenwasser des Testfeldes sowie im Wasser der Hochdruck-Bioreaktoren wurde DNA mittels Phenol/Chloroform (vgl. [1]) extrahiert. In weiterer Folge wurde die 16S rDNA mit PCR (polymerase chain reaction) amplifiziert, wobei das Primerpaar für das Amplikon V4 (siehe Abbildung 62) zum Einsatz kam. Die Sequenzierung der 16S rDNA erfolgte durch die *Firma Microsynth AG*.

NGS\_515f
 (5'-TCG TCG GCA GCG TCA GAT GTG TAT AAG AGA CAG GTG CCA GCM GCC GCG GTA A-3)
 NGS\_806r
 (5'-GTC TCG TGG GCT CGG AGA TGT GTA TAA GAG ACA GGG ACT ACH VGG GTW TCT AAT-3')

## Abbildung 62: Primerpaar V4

Die Extraktion der DNA aus Bohrkernen erfolgte mit dem FastDNA Spin Kit for Soil der *Firma MP Biomedicals*, die weitere Verfahrensweise ist deckungsgleich mit den oben beschriebenen Methoden für Lagerstättenwasser.

## 6.2.4 Versuchsablauf

## 6.2.4.1 Präinkubationsphase der Bohrkerne

Die Bohrkerne stammen aus einem strikt anaeroben Milieu (kein Sauerstoff in der Lagerstätte), sie wurden allerdings über mehrere Jahre unter aeroben Bedingungen gelagert, wodurch sich das ursprüngliche mikrobiologische Konsortium maßgeblich verändert hat. Um Wachstumsbedingungen ähnlich jener im Testfeld herzustellen, wurden die Bohrkerne unter anaeroben Bedingungen gemeinsam mit Formationswasser in gasdichten Aluminium-Kunststoffsäcken für mehrere Wochen bei 35°C inkubiert.

## 6.2.4.2 Inokulationsphase

Die Hochdruck-Bioreaktoren wurden unter Argon-Atmosphäre mit den präinkubierten Bohrkernen und mit frischem Lagerstättenwasser des Testfeldes befüllt (siehe Abbildung 63). Dadurch sollte eine mikrobielle Besiedlung der Kerne vergleichbar mit jener im Testfeld gewährleistet werden. Als abiotische Kontrolle (keine lebenden Mikroorganismen vorhanden) dienten zwei der zehn Hochdruckbioreaktoren. Sie wurden mit 35 kGy sterilisiert und, um eine Nachverkeimung auszuschließen, mit einem Biozid versetzt. Die Reaktoren wurden mit Mineralwolle und Aluminiumfolie isoliert, und auf 45°C temperiert. Die Inokulation erfolgte über einen Zeitraum von einem Monat.



Abbildung 63: Befüllung der Hochdruck-Bioreaktoren Quelle: BOKU Wien

#### 6.2.4.3 Methanphase

Zur Simulierung einer Erdgaslagerstätte wurden die Hochdruck-Bioreaktoren mit Methan befüllt (45 bar bei 45°C). Dabei erfolgte eine Entnahme von Reaktorwasser bis auf einen verbleibenden Restgehalt von ca. 20 % (in Annäherung an den Wassergehalt des Testfeldes). Das entnommene Wasser wurde hydrochemisch untersucht und molekularbiologisch charakterisiert. Die vorgefundene Mikroorganismengemeinschaft wird in weiterer Folge als mikrobielles Startkonsortium vor Wasserstoffexposition bezeichnet. Die Methanphase dauerte 86 Tage.

## 6.2.4.4 Wasserstoffphase

Methan wurde den Reaktoren bis auf einen Restdruck von 0,5 bar entnommen, gefolgt von einer weiteren Reaktorwasserentnahme für hydrochemische Untersuchungen. Anschließend wurden die Reaktoren mit Gasmischungen (4-10 % Wasserstoff und 0,3-2,5 % Kohlendioxid in Methan) befüllt (45 bar). Tabelle 16 zeigt die Zuordnung der unterschiedlichen Gasmischungen zu den zehn Hochdruck-Bioreaktoren bei Start der Wasserstoffphase. Direkt nach der Gasbefüllung erfolgte die erste Gasprobenentnahme mit einer "Gasmaus" (siehe Abbildung 64). In weiterer Folge wurde wöchentlich eine Gasprobe entnommen. Die Wasserstoffphase nahm insgesamt einen Zeitraum von 186 Tagen in Anspruch. Für ausgewählte Reaktoren erfolgte nach vollständiger Wasserstoffzehrung eine erneute Befüllung mit einer entsprechenden Gasmischung.

#### Tabelle 16: Zuordnung der einzelnen Gasmischungen bei Start der Wasserstoffphase

Reaktor		H <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	weitere Komponenten
Nr.		(Vol%)	(Vol%)	(Vol%)	(mg/m³)
1	biotisch	4	0,3	95,7	
2	biotisch	10	0,3	89,7	
3	biotisch	10	2,5	87,5	
4	biotisch	4	0,3	95,7	
5	biotisch	10	0,3	89,7	
6	biotisch	10	2,5	87,5	
7	abiotisch	10	2,5	87,5	
8	abiotisch	10	2,5	87,5	
9	biotisch	4	0,3	~95,7	6,2 Carbonylsulfid;
					5,2 Schwefelwasserstoff;
10	biotisch	4	0,3	~95,7	13,6 Propylmercaptan



Abbildung 64: Gasprobenentnahme Quelle: BOKU Wien

## 6.2.4.5 Öffnung der Reaktoren

Nach einer Wasserstoff-Exposition von max. 186 Tagen wurden die Reaktoren geöffnet (siehe Abbildung 65). Das verbleibende Reaktorwasser wurde hydrochemisch analysiert sowie einer Bestimmung des mikrobiologischen Endkonsortiums unterzogen. Aus einem Teil der Bohrkerne wurde ebenfalls DNA extrahiert. Um eventuelle Lösungsprozesse vor allem betreffend Kalzit und Dolomit festzustellen, wurden die Bohrkerne mineralogischpetrographisch untersucht (RAG).



#### Abbildung 65: Öffnung eines Reaktors

Quelle: BOKU Wien

#### 6.2.5 Mögliche mikrobiologische Umsetzungen bei Wasserstoff-Exposition

#### 6.2.5.1 Hintergrund

Mikrobiologische Konsortien in Erdöllagerstätten, welche Großteils vergleichbar mit Erdgaslagerstätten sind, werden i.d.R. in drei Stoffwechselgruppen unterteilt: (i) Methanbildende Archaea (Methanogene), (ii) Sulfat-reduzierende Bakterien und (iii) fermentative Bakterien (vgl. [2], S. 115 ff). Des Weiteren ist zu bedenken, dass die Beprobung von Lagerstättenwässern und damit die Evaluierung des mikrobiologischen Konsortiums in der Lagerstätte nur über Sonden (Bohrungen) möglich ist. Dadurch können neben autochthonen (ursprünglich vorhanden) auch allochthone (von außen eingebrachte) Mikroorganismen vorhanden sein. Die Einbringung kann entweder durch die Bohrung selbst, die Bohrspülung oder durch technische Sondenüberholungen erfolgen. Das Vorfinden allochthoner Mikroorganismen ist umso wahrscheinlicher, wenn das Lagerstättenwasser einen geringen Salzgehalt und mesophile (20-40°C) Temperaturen aufweist (vgl. [2]). Jedoch müssen die Mikroorganismen unter Sauerstoff-freien Bedingungen überleben und sich vermehren können.

Die Einspeicherung von Wasserstoff in natürliche ausgeförderte Erdgaslagerstätten kann zu erhöhter mikrobiologischer Aktivität führen (vgl. [3]). Dies trifft insbesondere zu, wenn geeignete terminale Elektronenakzeptoren ( $CO_2$ ,  $SO_4^{2^-}$ ,  $Fe^{3+}$ ,  $Mn^{4+}$ ) vorliegen. Nachfolgend sind hydrogenotrophe (Wasserstoff-verbrauchende) mikrobiologische Prozesse dargestellt, die für Erdgaslagerstätten von Bedeutung sind.

## 6.2.5.2 Sulfat-reduzierende Bakterien (SRB)

Sulfat-reduzierende Bakterien und Archaea (SRB) zählen zu den ersten Mikroorganismen, die sich auf der Erde entwickelt haben. Es wird vermutet, dass sie noch vor der Sauerstoff-Photosynthese aktiv waren. SRB sind anaerobe, heterotrophe Mikroorganismen, die Sauerstoff enthaltende Schwefelverbindungen (wie z.B. Sulfat, Sulfit, Thiosulfat, Trithionat, etc.) wie auch elementaren Schwefel (S°) als terminalen Elektronenakzeptor verwenden können (vgl. [2]). Als Endprodukt entsteht hierbei Schwefelwasserstoff (H<sub>2</sub>S), welcher toxisch, entflammbar und höchst korrosiv für Metalle aber auch für Beton ist. In der Erdgasbranche wird Schwefelwasserstoff enthaltendes Erdgas auch als Sauergas bezeichnet, der erlaubte Anteil im Erdgas ist in Österreich in der ÖVGW Richtlinie G31 geregelt (H<sub>2</sub>S 5 mg/m<sup>3</sup>). SRB zählen daher zu den best-untersuchten Mikroorganismen in Erdgas- und Erdöllagerstätten. Sie sind indigen in den Lagerstätten vorzufinden, vor allem wenn Kerogene mit hohen Schwefelgehalten als Ausgangsmaterial für Erdöl und Erdgas dienen (vgl. [4]). Bei Vorliegen von ausreichend Sulfat kann es im Erdgasspeicher zu einer vollständigen Wasserstoff-Zehrung kommen (vgl. Gl. 6-1), welche neben der Produktion von unerwünschtem H<sub>2</sub>S auch einen totalen Energieverlust des eingespeicherten Wasserstoffs bedeutet.

 $4H_2 + SO_4^{2-} + 2H^+ \rightarrow H_2S + 4H_2O$  [GI. 6-1]

Tabelle 17 gibt eine Übersicht von SRB, die in Erdölfeldern gefunden und isoliert wurden. Sie zeigt des Weiteren die große Bandbreite an Salinität und Temperatur, in der SRB vorkommen können.

Species	Salir	nity (%)	Temperature (°C)		Complete
	Range	Optimum	Range	Optimum	Oxidizer
Archaeoglobus fulgidus	0.02-3	2	60-85	76	+
Desulfacinum infernum	0–5	1	40-65	60	+
Desulfobacter vibrioformis	1–5	ND	5-38	33	+
Desulfobacterium cetonicum	Up to 5	1	20-37	30-35	+
Desulfomicrobium apsheronum	0–8	ND	4-40	25-30	-
Desulfotomaculum halophilum	1–14	4-6	30-40	35	-
Desulfotomaculum kuznetsovii	0–3	0	50-85	60-65	+
Desulfotomaculum nigrificans	Up to 4	1	40-70	60	-
Desulfotomaculum thermocisternum	Up to 5	0.3-1.2	41 <u>-</u> 75	62	-
Desulfovibrio gabonensis	1-17	5-6	15-40	30	-
Desulfovibrio longus	0-8	2	10-40	35	-
Desulfovibrio vietnamensis	0-10	5	12-45	37	-
Thermodesulfobacterium mobile	ND	ND	45-85	65	-
Thermodesulforhabdus norvegicus	0-5.6	1.6	44-74	60	+

#### Tabelle 17: Mesophile und thermophile SRB (adaptiert [5])

#### 6.2.5.3 Fermentative Bakterien

Fermentative Bakterien, die indigen in Erdölfeldern vorkommen, metabolisieren organische Substrate wie Alkane und aromatische Verbindungen. Unter ihnen ist z.B. der chemoorganotrophe Genus Thermotoga zu finden. Endprodukte des Stoffwechsels sind hier Acetat, CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub> (vgl. [6]). Gase, die durch fermentative Prozesse in einem Reservoir entstehen, können zu einer Erhöhung des Lagerstättendrucks führen. Fermentative

Bakterien werden auch für eine "Microbial Enhanced Oil Recovery" (MEOR) genutzt (vgl. [2]). Tabelle 18 zeigt fermentative Bakterien, die aus Erdölfeldern isoliert wurden. Bemerkenswert ist hierbei, dass einige fermentative Bakterien elementaren Schwefel bzw. Schwefeloxide reduzieren können, womit wiederum unerwünschter Schwefelwasserstoff entstehen kann.

Species	NaCl (%)		Tempera	ture (°C)	Reduction of sulfur compound	
	Range	Optimum	Range	Optimum	S°	$S_2O_3$
Acetoanaerobium romashkovii	ND	ND	30-60	37	ND	ND
Anaerobaculum thermoterrenum	0-2	1	28-60	55	+	+
Dethiosulfovibrio peptidovorans	1-10	3	20-45	42	+	+
Geotoga petraea	0.5-10	3	30-55	50	+	ND
Geotoga subterranea	0.5-10	4	30-60	45	+	ND
Haloanaerobium acetoethylicum	6-20	10	15-45	34	ND	ND
Haloanaerobium congolense	4-24	10	20-45	42	+	+
Haloanaerobium salsugo	6-24	9	22-51	40	ND	ND
Petrotoga miotherma	0.5-10	3	35-65	55	+	ND
Spirochaeta smaragdinae	1-10	5	20-40	37	+	+
Thermoanaerobacter brockii	0-4.5	ND	37-75	55-60	+	+
Thermotoga elfii	0-2.4	1.2	50-72	66	-	+
Thermotoga hypogea	0-1.5	0-0.2	56-90	70-75	-	+
Thermotoga subterranea	0-2.4	1-2	50-75	70	-	+
*ND - not detected						

Tabelle 18: Fermentative Bakterien isoliert von Erdölfeldern (adaptiert [5])

Einer der für die Einspeicherung von Wasserstoff relevantesten Prozesse der Gruppe der fermentativen Bakterien ist die Homoacetogenese (vgl. Gl. 6-2). Wie bei der Reduktion von Sulfat (Gl. 6-1) zieht diese Umwandlung einen totalen Verlust der Energie des eingespeicherten Wasserstoffs nach sich, sofern nicht Archaea im Reservoir vorhanden. Sind diese aktiv, können sie aus dem entstandenen Acetat wiederum Methan bilden.  $2CO_2 + 4H_2 -> CH_3COOH + 2H_2O$  [Gl. 6-2]

Acetogene (Acetat bildende Mikroorganismen) sind obligate anaerobe Bakterien, sie bilden Acetat durch Fermentation organischer Substanzen. Homoacetogene Mikroorganismen hingegen bilden Acetat direkt aus Kohlendioxid (Elektronenakzeptor) und Wasserstoff (Elektronendonator). Als prominente Vertreter zu erwähnen sind die Bakterien "*Clostridium aceticum*" und "*Acetobacterium woodii*" (vgl. [7]).

## 6.2.5.4 Methanogene Mikroorganismen

Methanogene Mikroorganismen gehören zur Domäne der Archaea, so wie Bakterien besitzen auch sie keine Zellorganellen. Einige Spezies der Methanogenen beinhalten im Namen zwar den Begriff "Bacteria", sie werden gegenwärtig jedoch der Domäne der Archaea zugerechnet. Methanogene Mikroorganismen bilden aus Alkoholen, Acetat und den Gasen  $H_2$  und  $CO_2$  Methan (CH<sub>4</sub>). Je nach verwertetem Substrat werden sie in 3 Hauptgruppen unterteilt:

• <u>Methylotrophe Methanogene</u> nutzen Methanol und Methylamine zur Produktion von Methan (vgl. [5], [6]).

- <u>Acetoklastische Methanogene</u> nutzen Acetat für die Methanogenese, nur die Ordnung der Methanosarcinales (Domäne Archaea, Phylum Euryarchaeota, Klasse Methanomicrobia) ist zu diesem Stoffwechselprozess befähigt (vgl. [7]).
- <u>Hydrogenotrophe Methanogene</u> nutzen CO<sub>2</sub> und H<sub>2</sub> zur Bildung von Methan (vgl. [8] & vgl. Gl. 6-3). Dies ist der einzige mikrobielle Prozess, bei dem Methan auf direktem Weg aus Gasen gebildet wird.

 $CO_2 + 4H_2 \rightarrow CH_4 + 2H_2O$  [Gl. 6-3]

Tabelle 19 gibt einen Überblick über aus Erdölfeldern isolierte Methanogene und zeigt deren Toleranz gegenüber Temperatur und Salinität mit gemeinsamer Anführung der möglichen Substratverwertung.

Species	Optimum	Temper	Temperature (°C)		Substrates	
				Methyl-		
	NaCI (%)	Range	Optimum	amines	Acetate	Hydrogen
Methanobacterium bryantii	0-2	25-40	37	-	-	+
Methanobacterium ivanovii	0.09	10-55	45	-	-	+
Methanobacterium thermoaggregans	2-4	40-70	60	-	-	+
Methanobacterium	0.2	20.00	65			+
thermoalcaliphilum	0-2	30-60	05	-	-	•
Methanobacterium	0_30	40.70	60	_	_	+
thermoautrophicum	0-30	40-70	00	_	_	
Methanocalculus halotolerans	5	25-45	38	-	-	+
Methanococcus thermolithotrophicus	1.4-2.4	17-62	60	-	-	+
Methanohalophilus euhalobius	6	10-50	28-37	+	-	-
Methanoplanus petrolearius	1-3	28-43	37	-	-	+
Methanosarcina mazei	0.1-2	10-50	37	+	+	-
Methanosarcina siciliae	2.4-3.6	20-50	40	+	-	-

Tabelle 19: Mesophile und thermophile Methanogene isoliert von Erdölfeldern (adaptiert [5])

Abschließend kann man festhalten, dass jede übermäßige Proliferation von Mikroorganismen auch die Gefahr der Porenverblockung der Erdgaslagerstätte in sich birgt, neben anderen unerwünschten Prozessen wie einer *in situ* Versauerung z.B. bei Acetatbildung und Korrosion technischer Einbauten bei Bildung von Schwefelwasserstoff.

# 6.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Versuchsdaten und Ergebnisse, die relevant für die Speicherung von Wasserstoff in porösen Untergrunderdgasspeichern sind, dienten als Entscheidungsgrundlage für die Durchführung des Feldversuches (Testfeld).

# 6.3.1 Hydrochemische Analysen

Nachfolgend sind Messwerte der hydrochemischen Analysen bzw. im Zuge der Experimente aufgetretene Veränderungen angeführt. In Tabelle 20 werden pH-Wert und Sulfat-Gehalt von Start-Methanphase, Start-Wasserstoffphase und Ende (Reaktoröffnung) gezeigt. Zusätzlich sind die Werte des Formationswassers aus dem Gasspeicher angeführt.

Reaktor	Start Methan- phase	Reaktor- öffnung	Start Methan- phase	Start Wasserstoff- phase	Reaktor- öffnung
	рΗ	рН	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	SO4 <sup>2-</sup> (mg/L)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)
Testfeld	8,7	-	17	-	-
1	8,4	9,5	327	378	Х
2	8,2	10,5	167	237	45
3	8,0	9,6	313	328	45
4	8,0	10,6	483	380	145
5	8,2	10,4	478	441	14
6	8,1	8,6	506	362	<2,4
7	9,0	х	450	548	253
8	9,0	х	411	449	54
9	7,5	Х	1282	1163	306
10	7,5	9,7	1096	1455	17
(x nicht ge	emessen da	Probenmenge ur			

Tabelle 20: pH-Wert und Sulfat-Gehalte der Reaktoren und des Testfeldes

Deutlich zu erkennen ist die Erhöhung des pH-Wertes im Zuge der Gasexposition. Des Weiteren wurde ein sehr starker Anstieg der Sulfat Gehalte im Reaktorwasser im Vergleich zum Formationswasser des Testfeldes verzeichnet, obwohl in den Kernen kein Sulfathaltiges Mineral vorgefunden wurde (siehe Tabelle 21). Vertiefende Untersuchungen mit nicht in Reaktoren verbauten Bohrkernen ergaben, dass die erhöhten Sulfat Gehalte auf die bei der Kernwerbung eingesetzte Bohrspülung zurückzuführen sind (vgl. [9]).

 Tabelle 21: Verteilung der Mineralien des verwendeten Bohrkernes in unterschiedlichen Teufen (Angaben in %)

Samplename	Depth (m)	Quartz	K-Feldspar	Plagioclase	Calcite	Dolomite	Ankerite	Siderite	Clay Tot + Mica
Sample 1	1158.32	21	2	6	17	11	5	3	35
Sample 2	1164.04	47	3	8	5	13	5	0	20
Sample 3	1165.80	48	3	7	4	12	6	0	17
Sample 4	1169.13	45	3	8	5	11	6	0	22

Quelle: RAG

Die Hauptquelle für den Eintrag von Sulfat in das Reaktorwasser war somit Baryt (Bariumsulfat) als Bestandteil der eingesetzten Bohrspülung. Sulfat ist im Zuge der Bohrung in die äußere Schicht des Kernes eingedrungen und wurde während der Inkubation im Reaktor aus dem Kern ausgewaschen (vgl. [10]). Eine weitere Untersuchung des Bohrkernes ergab ein Auslaugungspotential von ~ 3 mg Sulfat pro g Kern. Die einzelnen Bohrkerne in den Reaktoren wiesen eine Masse zwischen 2,7 und 3 kg auf. Da Sulfat, wie schon in Kap. 6.2.5 erwähnt, als terminaler Elektronenakzeptor für SRB fungieren kann, ist dies auch eine Erklärung für die Abnahme des Sulfat Gehaltes zu Ende der Versuchsserie. Die mittlere Abnahme der Sulfat Konzentration ist in den abiotischen Kontrollen geringer. Für diese Reaktoren wurde auch keine Wasserstoffzehrung beobachtet (siehe Abbildung 69).

## 6.3.2 Gasanalysen

Alle Reaktoren wurden in regelmäßigen Abständen beprobt (siehe Abbildung 64 in Kap. 6.2.4.4). In Abbildung 66 sieht man den Konzentrationsverlauf von Wasserstoff, Kohlendioxid und Methan (Vol.-%) für die Reaktoren 1 und 4 von Tag 0 bis Tag 109. Gestartet wurde in beiden Reaktoren mit einer Gasmischung, die 4 % Wasserstoff und 0,3 % Kohlendioxid in Methan enthielt.



Abbildung 66: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den Reaktoren 1 und 4: 4 %  $H_2$ , 0,3 %  $CO_2$  in Methan

Quelle: BOKU

Nach 109 Tagen erfolgte eine erneute Befüllung der Reaktoren mit einem Gasgemisch mit höherem Wasserstoffgehalt (10 % Wasserstoff und 0,3 % Kohlendioxid in Methan – siehe Abbildung 67).



Abbildung 67: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den Reaktoren 1 und 4: 10 %  $H_2$ , 0,3 % CO<sub>2</sub> in Methan, erneute Befüllung am Tag 109

#### Quelle: BOKU

In Abbildung 6-10 ist gut zu erkennen, dass der Wasserstoffgehalt von 4 Vol.-% innerhalb von 30-50 Tagen auf 0 Vol.-% fällt. Kohlendioxid geht ebenfalls gegen null, ist aber mit 0.3 Vol.-% für eine hydrogenotrophe Methanogenese unterstöchiometrisch vorhanden und kann so nicht die Wasserstoffabnahme erklären, auch nach der erneuten Befüllung ist die Abnahme des Wasserstoffes überproportional zum vorliegenden Kohlendioxidgehalt (siehe Abbildung 67). Beide Reaktoren wiesen jedoch einen hohen Sulfat Gehalt von 380 mg/L bei Start der Wasserstoffphase auf, welcher im Laufe des Experimentes stark abnahm. Es wird angenommen, Kohlendioxid dass Sulfat neben als zusätzlicher terminaler Elektronenakzeptor für Mikroorganismen fungierte (siehe Gl. 6-1). Jedoch konnten keine erhöhten Schwefelwasserstoffanteile in der Gasphase gemessen werden. Das erklärt sich dadurch, dass der hohe Gehalt an gelöstem zweiwertigen Eisen im Reaktorwasser zu einer Fällung von Eisensulfid führte. Dies wird durch eine schwarze Verfärbung, die an der Außenschicht der Kerne (Eindringtiefe der Bohrspülung) beobachtet wurde, bestätigt (siehe Abbildung 67 und [9]). Ein weiterer Bestandteil der Bohrspülung ist Kaliumcarbonat ( $K_2CO_3$ ), welches auch in der Außenschicht eines Bohrkerns nachgewiesen wurde. Dieses kann als CO<sub>2</sub>-Quelle und somit Elektronenakzeptor für die hydrogenotrophe Methanogenese fungieren.



Abbildung 68: Verfärbung des äußeren Rands eines Bohrkerns bei Öffnung der Reaktoren

#### Quelle: BOKU

In Abbildung 69 sieht man den Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten über den gesamten Versuchszeitraum für die Reaktoren 2 und 5. In diesem Fall lag die initiale Wasserstoffkonzentration bei 10 Vol.-%, es erfolgte keine erneute Gasbefüllung der Reaktoren. Auch hier ist eine vollständige bzw. nahezu vollständige Abnahme des Wasserstoffs zu verzeichnen, die wiederum durch Sulfat und CO<sub>2</sub> aus der Bohrspülung erklärt werden kann.



Abbildung 69: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den Reaktoren 2 und 5: 10 %  $H_2$ , 0,3 %  $CO_2$  in Methan Quelle: BOKU

In Abbildung 70 ist der Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten für die abiotischen Kontrollen (Reaktoren 7 und 8) dargestellt. Eine signifikante Abnahme der Wasserstoffkonzentration wurde nicht beobachtet ( $\alpha$ =0,05). Das legt nahe, dass abiotische Wasserstoffzehrungsprozesse bei den gewählten Versuchsbedingungen in keinem relevanten Ausmaß auftreten.

Die anfängliche Abnahme von Kohlendioxid in den abiotischen Kontrollreaktoren bestätigt, dass der initiale Rückgang der Kohlendioxidkonzentration in den biotischen Reaktoren (Abbildung 67, Abbildung 68 und Abbildung 69) auf Lösung des Kohlendioxids im Reaktorwasser zurückzuführen ist.



Abbildung 70: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den abiotischen Reaktoren 7 und 8: 10 %  $H_2$ , 2,5 %  $CO_2$  in Methan

Quelle: BOKU

#### 6.3.3 Charakterisierung des mikrobiellen Konsortiums

In Abbildung 71 sind die Verschiebungen des mikrobiellen Konsortiums im Zuge der Wasserstoffexposition für vier Reaktoren dargestellt (Startkonsortium und Endkonsortium). Zu Vergleichszwecken wurde das Konsortium des Formationswassers (Probenahme Testfeld Herbst 2013) eingefügt.



#### Abbildung 71: Mikrobielle Konsortien in Reaktoren (Start vs. Ende Wasserstoffexposition) und Formationswasser (Testfeld). Darstellung auf Phylum-Ebene.

#### Quelle: BOKU

Die arüne Färbung umfasst Gruppen von Bakterien. die zu fermentativen Stoffwechselprozessen befähigt sind. D.h. sie sind auf den Abbau organischer Verbindungen spezialisiert und verwenden Zwischenprodukte des Abbaus als Elektronenakzeptoren. Die grün-gelben Balken stehen ebenfalls für fermentative Bakterien, welche aber zusätzlich Sulfat bzw. elementaren Schwefel als terminalen Elektronenakzeptor verwenden können. Die rosa Färbung umschließt die Gruppe der methanogenen Archaea. In Abbildung 71 ist die Verschiebung des mikrobiellen Konsortiums je nach Nährstoffangebot bzw. Verfügbarkeit von terminalen Elektronenakzeptoren gut zu erkennen. Vergleicht man den rechtesten Balken (Testfeld November 2013) mit den Start-Konsortien (R1, R2, R4, R5), so ist zu erkennen, dass methanogene Archaea in den Reaktoren kaum mehr vorhanden waren während Sulfat reduzierenden fermentative Bakterien zugenommen haben. Der Grund hierfür liegt, wie oben bereits dargestellt, in einem Sulfat Eintrag durch Bohrspülungsreste in den Bohrkernen. Vergleicht man nun die Start- und End-Konsortien der Reaktoren R1, R2, R4 und R5, so ist sehr gut zu erkennen, dass die methanogenen Archaea nach Wasserstoffexposition einen Anteil von bis zu 75 % aufweisen und damit die dominante Gruppe des gesamten Konsortiums darstellen. Dies kann auf die Umwandlung von

Kohlendioxid und Wasserstoff zu Methan zurückgeführt werden, wobei ein Anteil des erforderlichen Kohlendioxids aus dem Kaliumkarbonat der Bohrspülung stammt.

## 6.3.4 Schlussfolgerungen

Durch Simulation von Speicherbedingungen des Testfeldes im Labor hat sich gezeigt, dass aus mikrobiologischer Sicht eine Einspeicherung von Wasserstoff auch in einer Konzentration von 10 Vol.-% möglich ist, solange terminale Elektronenakzeptoren nicht in erheblichem Ausmaß vorhanden oder verfügbar sind. Diese Aussage kann auch auf andere poröse Erdgasfelder übertragen werden, jedoch sollte jedes Erdgasfeld im Sinne seiner mineralogisch-petrographischen und hydrochemischen Zusammensetzung geprüft werden. Zusätzlich sollte das vorhandene mikrobiologische Konsortium hinsichtlich einer möglichen Wasserstoff-Umsetzung evaluiert werden. Wie in Kapitel 6.3.3 zu sehen ist, adaptiert sich das im Speicher vorhandene mikrobiologische Konsortium an sich ändernde Bedingungen wie z.B. die Verfügbarkeit von Nährstoffen und terminalen Elektronenakzeptoren sowie Änderungen von Temperatur, Salinität und pH Wert. Mögliche unerwünschte Prozesse können zu Porenverblockungen infolge von Biomassewachstum führen oder eine Änderung des chemischen Gleichgewichts im Erdgasspeicher aufgrund der Anreicherung von mikrobiellen Stoffwechselprodukten (z.B. Acetat) hervorrufen. Als weiterer Wasserstoff verbrauchender Prozess ist die hydrogenotrophe Methanogenese zu sehen, bei der Kohlendioxid und Wasserstoff direkt zu Methan umgewandelt werden. Dadurch wird zwar die Gesamtenergie des eingespeicherten Gases reduziert, jedoch mit dem biogen entstandenen Methan wiederum ein chemischer Energieträger generiert. Wie in Kap. 6.3.2 und 6.3.3 ersichtlich, hat in einzelnen Reaktoren eine hydrogenotrophe Methanogenese stattgefunden. Zur Beurteilung des technologischen Potenzials dieser Umwandlung wurde mit März 2017 das Leitprojekt Underground Sun Conversion (gefördert durch den Klima- und Energiefond) Schlussendlich waren Resultate der Laborexperimente gestartet. die eine Entscheidungsgrundlage für die Durchführung des Feldversuches, bei dem Erdgas mit einem Gehalt von 10 Vol.-% Wasserstoff eingespeichert wurde. Änderungen des mikrobiellen Konsortiums im Laufe des Feldversuches sind in Kapitel 9 dargestellt.

# 6.4 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

In der nachfolgenden Tabelle sind alle Veröffentlichungen und Dokumente, die im Zuge des Projekts Underground Sun Storage erstellt wurden, aufgelistet.

Nr.	Titel	Jahr	Autoren
1	Abstract: Geobatteries: is there a limitation to adding	2015	Schritter
	hydrogen to porous natural gas storages?	2015	Loibner
2	Geobatteries: is there a limitation to adding	2015	Schritter
	hydrogen to porous natural gas storages?	2013	Loibner
3	Abstract: Microbial processes in hydrogen exposed	2015	Schritter
	porous underground gas storages (UGS)	2015	Loibner
4	Microbial processes in hydrogen exposed porous	2015	Schritter
	underground gas storages (UGS)	2015	Loibner
5	Abstract: Microbial processes in hydrogen exposed		Schritter
	porous underground gas storages (UGS)- results from	2016	Loibner
	lab scale simulation experiments - ABE Workshop		Loibilei
6	Microbial processes in hydrogen exposed porous		Schritter
	underground gas storages (UGS) - results from lab scale	2016	Loibner
	simulation experiments - ABE Workshop		Loibilei
7	Master Thesis: Microbially induced changes upon the	2016	Komm
	storage of a H2 / CH4 / CO2 Mixture in porous rock	2010	Komm
8	Constraints and potential of exploiting microbial	2016	Loibner
	capabilities for sub-surface applications	2010	LUIDHEI

# 6.5 Literaturverzeichnis

[1] SAMBROOK, J., & RUSSELL, D. W. (2006): *Purification of nucleic acids by extraction with phenol: chloroform.* Cold Spring Harbor Protocols, 2006(1), pdb-prot4455

[2] WOLICKA, D., BORKOWSKI, A., (2012), *Microorganisms and Crude Oil*, University of Warsaw Poland, (2012)

[3] PANFILOV, M., GRAVIER, G., & FILLACIER, S. (2006): Underground storage of  $H_2$  and  $H_2$ -CO<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub> mixtures. In ECMOR X-10th European Conference on the Mathematics of Oil Recovery.

[4] DRIVER, L., & FREEDMAN, E. (1993): Report to congress on hydrogen sulfide air emissions associated with the extraction of oil and natural gas. Final report (No. PB-94-131224/XAB; EPA--453/R-93/045). Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC (United States). Office of Air Quality Planning and Standards

[5] MAGOT, M., OLLIVIER, B., & PATEL, B. K. (2000): *Microbiology of petroleum reservoirs*. Antonie van Leeuwenhoek, 77(2), 103-116.

[6] YOUSSEF N., ELSHAHED M.S., MCINERNEY M.J. (2009): *Microbial Processes in Oil Fields: Culprits, Problems, and Opportunities; Advances in Applied Microbiology*, Volume 66 © 2009 Elsevier Inc. ISSN 0065-2164, DOI: 10.1016/S0065-2164(08)00806-X

[7] DIEKERT G., WOHLFARTH G. (1994): *Metabolism of homoacetogens*, Anton Leeuw Int. J.Gen. Mol. Microbiol. 66, 209-221

[8] JONES J.W., NAGLE D.P., WHITMAN W.B. (1987): Methanogens and the Diversity of Archaebacteria, Microbiological Reviews Mar. 1987, p. 135-177.

[9] BOTTIG M. (2008): Diagenetische Umwandlungen in Sandsteinen der gasgesättigten, der sekundär verwässerten, der Wasser-, und der Übergangszone des Erdgas – Speichers Haidach in der Molasse Zone, Österreich. Diploma thesis, University of Vienna

[10] WANDREY M., MOROZOVA D., ZETTLITZER M., WÜRDEMANN H. (2010): Assessing drilling mud and technical fluid contamination in rock core and brine samples intended for microbiological monitoring at the CO<sub>2</sub> storage site in Ketzin using fluorescent dye tracers. International Journal of Greenhouse Gas Control 4 (2010) 972–980, doi:10.1016/j.ijggc.2010.05.012

# 6.6 Kontaktdaten

UNIVERSITÄT FÜR BODENKULTUR WIEN Department IFA-Tulln Institut für Umweltbiotechnologie a.o.Prof.DI Dr. Andreas P. Loibner Konrad Lorenz Str. 20, A-3430 Tulln Tel.: +43-1-47654-97470 Fax: +43-1-47654-97409 E-Mail: andreas.loibner@boku.ac.at www.boku.ac.at

Autoren: J. Schritter, A.P. Loibner

# 7 Materialintegrität in Wasserstoff-beaufschlagten Gasspeicheranlagen

# 7.1 Aufgabenstellung metallische Werkstoffe

Ziel dieses Arbeitspakets war es die chemomechanische Beständigkeit der im Untergrundgasspeicher verwendeten Stahlsorten L80, P110, 42CrMo4 QT, 42CrMo4 QTT, L360 und P235, gegenüber einem Angriff durch gasförmigen Wasserstoff bis zu einem maximalen Wasserstoffpartialdruck von 10 bar bei 25 °C zu untersuchen.

# 7.2 Inhaltliche Darstellung metallische Werkstoffe

Die Anfälligkeit unterschiedlicher Stahlsorten gegenüber einer Versprödung durch gasförmigen Wasserstoff wurde mithilfe von spezifischen Korrosionstests untersucht. Dazu wurde ein Versuchsplan entwickelt, welcher eine Differenzierung der Einflüsse von H<sub>2</sub> und der, während des Betriebs eines Untergrundgasspeichers theoretisch möglichen, Komponenten im Angriffsmedium auf die mechanischen Werkstoffeigenschaften ermöglicht (Tabelle 22). Um die durch H<sub>2</sub> unterstützte Werkstoffversprödung zu quantifizieren wurden Langsamzugversuche (SSRTs) bei einer Dehnrate von 10<sup>-6</sup> s<sup>-1</sup> und bei einem Gesamtdruck von 1 und 12 bar in spezifischen Angriffsmedien durchgeführt. Anhand der gemessenen Bruchdehnungen konnten die Wirkungen der im Angriffsmedium vorhandenen Spezies auf die mechanischen Werkstoffeigenschaften bewertet werden. Der Versuchsaufbau für die SSRTs ist in Abb.1 dargestellt.



Abbildung 72: Versuchsaufbau für SSRTs, a) Zugprüfeinrichtung mit Glaszelle für die SSRTs bei 1 bar, b) Zugprüfeinrichtung mit Autoclav für die SSRTs bei 12 bar

Um eine, durch molekularen Wasserstoff verursachte, vorzeitige Werkstoffschädigung zu untersuchen, wurden Versuche unter konstanter Last durchgeführt. Die Wirkung von H<sub>2</sub>, bei Vorhandensein einer definierten mechanischen Spannung, wurde anhand der Standzeiten erfasst.

Die CLTs wurden an einer mechanischen Hebelapparatur mit einer konstanten Last von 100 % R<sub>P0.2</sub>, für eine maximale Prüfdauer von 720 h durchgeführt. Zu Beginn wurde festgelegt, dass eine Probe, welche unter der gewählten Last im jeweiligen Medium während einer maximalen Laufzeit von 720 h nicht bricht, als Durchläufer gilt. Der Versuchsaufbau der CLTs ist in Abbildung 73 dargestellt.



Abbildung 73: Versuchsaufbau für CLTs bei 1 bar

Um den Einfluss der unterschiedlichen Medien auf die Wasserstoffabsorption und den Wasserstoffgehalt der Werkstoffe L80 und P110 zu untersuchen, wurden von jeder Stahlsorte und je Auslagerungsdauer drei quaderförmige Proben bei einer Temperatur von 25 °C und bei einem Druck von 1 bar in ausgewählten Angriffsmedien ausgelagert. Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 74: Versuchsaufbau für Auslagerungstests bei 1 bar veranschaulicht.



Abbildung 74: Versuchsaufbau für Auslagerungstests bei 1 bar

Der Versuchsplan ist in Tabelle 22 dargestellt. Die festgelegten Versuchsbedingungen (Vbs) sind von 1 bis 7 mit ansteigender Aggressivität angeordnet. Mit jeder Vb ändern sich die gasförmigen und flüssigen Bestandteile im Angriffsmedium insofern, dass eine Differenzierung der Korrosionseinflüsse der einzelnen Komponenten des Prüfmediums möglich ist.

	Madium	Druck	Werk	stoffe	
VD [Nr.]	Medium	p [bar]	L80	P110	
	Glycerin	1	2 x	2 x	
1	Glycerin 100 Vol% N₂	12	2 x	2 x	
2	5 Gew% NaCl	1	2 x	2 x	
	100 VOI% N <sub>2</sub>	12	2 x	2 x	
3	5 Gew% NaCl	1	2 x	2 x	
, in the second	100 Vol% CO <sub>2</sub>	12	2 x	2 x	in a local poor
4	5 Gew% NaCl, 17 Vol% CO <sub>2</sub>	1	2 x	2 x	tedoler 1
	83 Vol% H <sub>2</sub>	12	2 X	2 x	dor Vo
5	5 Gew% NaCl 0,5 Vol% HAc 100 Vol% N <sub>2</sub>	1	2 x	2 x	Agenceelute
6	5 Gew% NaCl 0,5 Vol% HAc 7 Vol% H <sub>2</sub> S 93 Vol% N <sub>2</sub>	1	2 x	2 x	
7	5 Gew% NaCl 0,5 Vol% HAc 7 Vol% H <sub>2</sub> S 93 Vol% H <sub>2</sub>	1	2 x	2 x	

Tabelle 22: Versuchsplan zur Untersuchung der Werkstoffe L80, P110, 42CrMo4 QT, 42CrMo4QTT, P235 und L360 auf die Versprödung durch H2

Die SSRTs im inerten Medium (Vb 1) und in den chloridhaltigen Prüflösungen, welche jeweils mit  $N_2$ ,  $CO_2$  sowie mit  $CO_2 + H_2$  gespült wurden (Vb 2, 3 und 4), erfolgten bei einem Druck von 1 und 12 bar. Die Tests in den chlorid- und essigsäurehaltigen Prüflösungen mit den Spülgasen  $N_2$ ,  $H_2S + N_2$  sowie  $H_2S + H_2$  (Vb 5, 6 und 7) wurden bei einem Druck von

1 bar durchgeführt. Mithilfe der Vbs 2, 3 und 4 wurden die unterschiedlichen Einflüsse von Chlorid, Kohlendioxid und Wasserstoff untersucht. Bei einem Wasserstoffanteil im Prüfgas von 83 Vol.-% und einem Druck von 12 bar entsprach der Wasserstoffpartialdruck  $p_{H2} = 9,96$ Werkstoffe bar (Vb 4). Damit konnten die unter möglichst betriebsnahen Umgebungsbedingungen untersucht werden. Mithilfe von Vb 5, 6 und 7 wurden die unterschiedlichen Einflüsse von Essigsäure, Schwefelwasserstoff und Wasserstoff untersucht. Da Schwefelwasserstoff die Rekombination von adsorbierten H-Atomen zu molekularem H<sub>2</sub> hemmt und die Absorption von atomarem H unterstützt, sind Vb 6 und Vb 7 als sehr aggressiv einzustufen. Die Zusammensetzung des Prüfgases bei Vb 6 wurde entsprechend NACE TM 0177 (mild conditions) festgelegt. Unter Vb 7 wurde der Stickstoff in dem Prüfgas mit 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 6) durch gasförmigen Wasserstoff ersetzt. Damit wurde sichergestellt, dass der Einfluss von molekularem Wasserstoff differenziert dargestellt werden kann.

Die Werkstoffe L80 und P110 wurden mithilfe der SSRTs in Vb 1 – 7 bei 1 und 12 bar, mittels CLTs in Vb 3 und 4 bei 1 bar sowie mittels Auslagerungstests in Vb 3 – 7 bei 1 bar getestet. Die restlichen Stahlsorten wurden mittels SSRTs in Vb 1 bei 1 bar und in Vb 3 und 4 bei 12 bar getestet. Die mit den SSRTs und CLTs getesteten Proben der Werkstoffe L80 und P110 wurde fraktographisch untersucht und deren Gefüge mittels Stereo- und Rasterelektronen-mikroskop charakterisiert. Die Werkstoffe L80 und P110 wurden mittels Auslagerungstests und anschließender Wasserstoffanalytik untersucht. Diese erfolgten bei Vb 3, 5, 6 und 7 jeweils für 72 h. Bei Vb 4 wurde für jeweils 48, 72 und 168 h ausgelagert. Damit konnte der zeitliche Einfluss der Wasserstoffabsorption bei Exposition in gasförmigem Wasserstoff und Kohlendioxid genauer untersucht werden. Mittels Heißgasextraktion wurde der Wasserstoffgehalt der beiden Werkstoffe im Anlieferungszustand, sowie nach deren Auslagerung analysiert.

# 7.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen metallische Werkstoffe

## 7.3.1 SSRTs

Die arithmetischen Mittelwerte der Bruchdehnungen des Werkstoffs L80 sind in Abbildung 75 dargestellt.



Abbildung 75: Arithmetische Mittelwerte der Bruchdehnungen des Werkstoffs L80

Im Vergleich zu den Tests in Glycerin (Vb 1) hat die chloridhaltige Lösung bei einem Druck von 1 bar, sowie bei 12 bar 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 2), keinen signifikanten Einfluss auf die Zähigkeit des Werkstoffs.

Die Anwesenheit von 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3) mit  $p_{CO2}$  = 1 bar führt zu keiner signifikanten Reduktion der Bruchdehnung. Die Tests bei 100 Vol.-%  $CO_2$  (Vb 3) und  $p_{CO2}$  = 12 bar zeigen, dass es im Vergleich zu den Tests in Glycerin (Vb 1) und jenen in 5 Gew.-% NaCl + 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 2) zu einer geringfügigen Versprödung kommt, was auf die erhöhte CO<sub>2</sub>-Konzentration im Elektrolyt zurückzuführen ist. In Vb 4 wird dem Elektrolyt erstmals molekularer Wasserstoff und Kohlendioxid gemeinsam zugeführt. Der Vergleich der Tests im chloridhaltigen Medium mit 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3), sowie 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> + 83 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 4), jeweils bei einem Druck von 1 bar, zeigt, dass die Bruchdehnung in Anwesenheit von H<sub>2</sub> nicht signifikant kleiner ist als in reinem CO<sub>2</sub>. Die Aufnahme von Wasserstoff aus der Gasphase ist auszuschließen, da die thermodynamischen und chemischen Bedingungen für diesen Reaktionspfad zu mild sind. Bei einem Gesamtdruck von 12 bar beträgt das Partialdruckverhältnis  $p_{H2}$ :  $p_{CO2}$  = 10 : 2. Die Aggressivität des Mediums wird primär durch den erhöhten CO<sub>2</sub>-Partialdruck verstärkt, jedoch ist der Bruchdehnungsunterschied zu den Tests bei 1 bar nicht signifikant. Die beobachtete Abnahme der Bruchdehnung ist unkritisch, da der erreichte Wert weit vor der Gleichmaßdehnung liegt. Die vorliegende Degradation der Zähigkeit kann auf das, im Elektrolyten relativ zum H<sub>2</sub> gut lösliche und dissoziierte, CO<sub>2</sub> zurückgeführt werden. Weiters ist die Bruchdehnung in Anwesenheit von  $CO_2 + H_2$  (Vb 4) etwas höher als jene unter der Einwirkung von reinem  $CO_2$  (Vb 3). In dieser Hinsicht ist der korrosiven Wirkung des reinen Kohlendioxids eine dominierende Wirkung zuzuschreiben. Die Anwesenheit von  $CO_2$  führt zu einer Absenkung des pH-Werts im Medium. Die anodische Auflösung des Eisens, sowie das Auftreten von Lochkorrosion können begünstigt werden.

In der Prüflösung 5 Gew.-% NaCl + 0,5 Vol.-% HAc + 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 5) führt der Gehalt an Essigsäure zu einer Absenkung des pH-Werts und bewirkt eine Erhöhung des allgemeinen Korrosionsangriffs. Jedoch wurde in diesem Medium keine signifikante Reduktion der Bruchdehnung festgestellt. Die Zugabe von 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 6) führt hingegen zu einem dramatischen Rückgang der Bruchdehnung. Der niedrige pH-Wert des Mediums und die, durch die katalytische Wirkung des Schwefelwasserstoffs verstärkte H-Absorption führen zu einer sehr raschen Versprödung des L80. In Vb 7 wird die chlorid- und essigsäurehaltige Prüflösung mit einem Gemisch aus 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S und 93 Vol.-% H<sub>2</sub> gespült. Analog zu den Ergebnissen unter Vb 6 ist auch hier ein sehr starker Rückgang der Bruchdehnung zu beobachten, was primär auf die Wirkung des Wasserstoffpromotors im sauren Medium und nicht auf die Anwesenheit des molekularen Wasserstoffs zurückzuführen ist. Die Bruchdehnungen der Tests in 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 6), sowie jene in 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S und 93 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 7) unterscheiden sich nicht signifikant, woraus geschlossen werden kann, dass die Anwesenheit von molekularem H<sub>2</sub> keine Wirkung zeigt. In Abbildung 76 sind die arithmetischen Mittelwerte der Bruchdehnungen des Werkstoffs P110 abgebildet.



Abbildung 76: Arithmetische Mittelwerte der Bruchdehnungen des Werkstoffes P110

Verglichen mit den Messungen in Glycerin mit 100 Vol.-N<sub>2</sub> (Vb 1) führt die Prüfung in 5 Gew.-% NaCl mit 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 2) zu einer geringfügigen Herabsetzung der Duktilität auf beiden Partialdruckniveaus. Bei 12 bar ist dieser Effekt jedoch etwas deutlicher zu sehen.

Wird die Prüflösung mit 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> gespült (Vb 3), so zeigt sich im Vergleich zu den Tests in Glycerin eine unkritische Verringerung der Bruchdehnung. Auch hier kommt es bei 12 bar zu einer geringfügig stärkeren Versprödung als bei 1 bar. Diese Tatsache ist auf die erhöhte CO<sub>2</sub>-Konzentration in der Prüflösung und einen dadurch herabgesetzten pH-Wert, sowie die erhöhte Aggressivität des Mediums zurückzuführen. Die Tests unter Vb 4 erfolgten bei einer Prüfgaszusammensetzung von 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> und 83 Vol.-% H<sub>2</sub>. Der Werkstoff P110 verhält sich in diesem Medium sehr ähnlich wie unter Vb 3. Es kommt zu einer geringfügigen Versprödung, jedoch ist diese als unkritisch einzustufen, da die erreichte Bruchdehnung signifikant größer als die Gleichmaßdehnung ist. Die Gegenüberstellung der Ergebnisse in 5 Gew.-% NaCl + 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3) mit jenen in 5 Gew.-% NaCl + 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> + 83 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 4) zeigt, dass gasförmiger Wasserstoff keine schädigenden Auswirkungen auf die mechanischen Eigenschaften des Werkstoffs hat. Der korrosiven Wirkung des aggressiven Kohlendioxids ist in Bezug auf die Verringerung der Duktilität eine dominante Wirkung zuzuschreiben.

Die Zugabe von Essigsäure führt zu einer gesteigerten Aggressivität der chloridhaltigen Prüflösung. Als Folge dessen ist die Bruchdehnung des P110 in dem Medium 5 Gew.-% NaCl + 0,5 Vol.-% HAc + 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 5) etwas geringer als jene in den HAc-freien Prüfmedien (Vb 1 bis 4). Bei Verwendung der Spülgasmischung 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 6) in demselben wässrigen Medium wie bei Vb 5 wird deutlich, welche dramatischen Auswirkungen allein das Vorhandensein des Wasserstoffpromotors H<sub>2</sub>S auf die Zähigkeit des Stahls hat. Der Werkstoff P110 reagiert mit seiner, im Vergleich zum L80, etwas höheren Festigkeit, noch sensibler auf die Wirkung des Schwefelwasserstoffs und versprödet rapide. Der niedrige pH-Wert und die verstärkte Wasserstoffabsorption führen dazu, dass die Zugproben des P110 bereits zu Beginn des plastischen Bereichs brechen. Im Vergleich zu diesen Tests im H<sub>2</sub>S + N<sub>2</sub>-haltigen Medium (Vb 6) kommt es in der mit H<sub>2</sub>S + H<sub>2</sub> (Vb 7) gespülten Prüflösung zu einer nicht signifikant höheren Bruchdehnung. Die

Anwesenheit von gasförmigem Wasserstoff führt in diesem Medium also zu keiner zusätzlichen Reduktion der Zähigkeit. In

Abbildung 77sind die ermittelten Bruchdehnungen der Werkstoffe 42CrMo4 QT, 42CrMo4 QTT, L360 und P235 dargestellt.





In Abb. 7-6 ist zu sehen, dass es weder am 42CrMo4 QT noch am 42 CrMo4 QTT, L360 oder P235 zu einer signifikanten Versprödung aufgrund der Einwirkung von H<sub>2</sub> kommt. Die ansäuernde Wirkung des Kohlendioxids hat einen dominierenden Einfluss auf die Reduktion der Duktilität der untersuchten Materialien, da sich die im  $CO_2$ -gespülten Medium erreichten Bruchdehnungen nicht signifikant von jenen, welche im  $CO_2 + H_2$  gespülten Medium gemessen wurden, unterscheiden. Wie zu erwarten, versprödet der 42CrMo4 in beiden Zuständen QT (quenched and tempered) sowie QTT (quenched and double tempered) in den kohlendioxidhaltigen Medien etwas stärker als die relativ duktilen Werkstoffe L360 und P235.

# 7.3.2 CLTs

Unter einer konstanten Zugbelastung von 100 %  $R_{p0.2}$ , wurde mit den Werkstoffen L80 und P110 in 5 Gew.-% NaCl mit 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3), sowie in 5 Gew.-% NaCl mit 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> + 83 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 4) jeweils 1 Durchläufer, bei einer maximalen Prüfdauer von 720 Stunden, erzielt. Dies zeigt, dass weder das aggressive Kohlendioxid, noch der gasförmige Wasserstoff an der Dehngrenze zu einem zeitverzögerten Bruch führt. Dieser Test stellt in Bezug auf wasserstoffinduzierte Spannungsrisskorrosion ein wichtiges Kriterium dar, da den Absorptions- und Diffusionsprozessen genügend Zeit zur Verfügung steht, um atomaren Wasserstoff an Gitterstörstellen anzureichern und einen Schädigungsprozess einzuleiten. Dabei ist die Belastung von 100 %  $R_{p0.2}$  ein relativ scharfer Test, da zwischen der aufgebrachten Spannung und dem diffusiven, schädigenden Wasserstoffanteil eine proportionale Abhängigkeit besteht.

## 7.3.3 Auslagerungstests

Die Analyse des Wasserstoffgehalts des Werkstoffs L80 im Anlieferungszustand ergab 0,14 ppm. Dieser Wert wird den gemessenen Gehalten jener Proben gegenübergestellt, die für eine gewisse Zeit in unterschiedlichen Prüflösungen jeweils bei 1 bar und 25 °C ausgelagert wurden. Die Exposition in den chloridhaltigen Lösungen, welche mit 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3) bzw. mit 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> + 83 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 4) gespült wurde, führte innerhalb von 72 h zu keiner signifikanten Erhöhung des H-Gehalts. Ein Zusammenhang zwischen Auslagerungsdauer und absorbiertem Wasserstoffanteil konnte bei den Tests unter Vb 4 nicht festgestellt werden, da es innerhalb der gesamten Testdauer (168 h) zu keiner signifikanten Wasserstoffabsorption kam. Die Auslagerung des L80 in der Lösung mit 5 Gew.-% NaCl + 0,5 Vol.- HAc, welche mit 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 5) für 72 h gespült wurde, führte zu einer geringfügig erhöhten H-Konzentration von 0,26 ppm. Wurde diese Prüflösung mit 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 6) gespült, steigerte sich die H-Konzentration im Werkstoff auf 3,49 ppm. Die Einleitung von 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 7), führte ebenfalls zu einer signifikanten Steigerung des H-Gehalts auf 3,11 ppm. Die erhöhten Gehalte sind auf den katalytischen Effekt von H<sub>2</sub>S zurückzuführen, da durch dessen Einwirkung die Rekombinationsrate des oberflächlich adsorbierten Wasserstoffs gesenkt und die H-Absorption begünstigt wird. Der Vergleich von Vb 6 und Vb 7 zeigt, dass das Angebot von gasförmigem Wasserstoff zu keiner zusätzlichen H-Absorption führt.

Auch beim Werkstoff P110 wurde eine Wasserstoffanalyse im Anlieferungszustand durchgeführt, welche einen H-Gehalt von 0,20 ppm ergab. Mit diesem Ausgangswert wurden

in weiterer Folge die Ergebnisse der, in den unterschiedlichen Medien bei 1 bar und 25 °C ausgelagerten, P110-Proben verglichen. Die Exposition der Proben in der Lösung mit 5 Gew.- % NaCl, welche mit 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3) bzw. mit 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> + 83 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 4), jeweils für 72 h gespült wurde, führte zu keiner zusätzlichen Absorption von Ein Zusammenhang zwischen Expositionsdauer Wasserstoff. und absorbiertem Wasserstoffanteil konnte unter Vb 4 nicht festgestellt werden, da es auch nach einer verlängerten Auslagerungsdauer von 168 h zu keiner Zunahme der Wasserstoffkonzentration im Werkstoff kam. Die Auslagerung des P110 in 5 Gew.-% NaCl + 0,5 Vol.-HAc mit 100 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 5) ergab eine H-Konzentration von 0,16 ppm. Der Test in derselben wässrigen Prüflösung, jedoch mit dem weitaus aggressiveren Spülgas aus 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% N<sub>2</sub> (Vb 6), führte zu einem deutlich gesteigerten H-Gehalt von 3,41 ppm. Auch in der Spülgasmischung 7 Vol.-% H<sub>2</sub>S + 93 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 7) kam es zu einer Steigerung des H-Gehalts auf 3,97 ppm. Der geringe Unterschied der Wasserstoffkonzentrationen, der in diesen beiden Medien exponierten Proben, lässt darauf schließen, dass die Anwesenheit des molekularen H<sub>2</sub> die H-Absorption nicht signifikant beeinflusst. Der erhöhte H-Gehalt ist in beiden Fällen durch das Angebot von H<sub>2</sub>S bestimmt, da diese Spezies die Rekombinationsrate von oberflächlich adsorbierten Wasserstoffatomen senkt und die H-Absorption wesentlich erleichtert.

# 7.4 Schlussfolgerungen metallische Werkstoffe

Ziel dieses Arbeitspakets war es, die Anfälligkeit der Werkstoffe L80 und P110, 42CrMo4 QT, 42CrMo4 QTT, P235 und L360 gegenüber einer Versprödung durch gasförmigen Wasserstoff bis zu einem maximalen Wasserstoffpartialdruck von 10 bar zu untersuchen. Mit Hilfe der Langsamzugversuche wurde gezeigt, dass es an den unter den gewählten Versuchsbedingungen getesteten Werkstoffen zu keiner zusätzlichen Degradation der mechanischen Eigenschaften wie Bruchdehnung, Zugfestigkeit oder Dehngrenze durch die Einwirkung von gasförmigem Wasserstoff kommt. Lediglich die pH-Wert senkende Wirkung des Kohlendioxids führte teilweise zu einer geringfügigen Reduktion der Bruchdehnung. Die Einleitung von H<sub>2</sub>S-haltigen Prüfgasen in die jeweiligen Prüfmedien führte hingegen zu einer massiven Reduktion der Bruchdehnungen und zu einer verstärkten Wasserstoffaufnahme. Die Einbringung von H<sub>2</sub> in das H<sub>2</sub>S-haltige Medium führte zu keinem zusätzlichen Verlust der Duktilität der untersuchten Werkstoffe L80 und P110. Die Tests unter konstanter Last führten zu dem Ergebnis, dass es an den Werkstoffen L80 und P110 in 5 Gew.-% NaCl weder bei einer Spülgaszusammensetzung von 100 Vol.-% CO<sub>2</sub> (Vb 3), noch bei 17 Vol.-% CO<sub>2</sub> + 83 Vol.-% H<sub>2</sub> (Vb 4), zu einem vorzeitigen Werkstoffversagen kommt. Weder die Anwesenheit von Kohlendioxid noch die Einwirkung von gasförmigem Wasserstoff konnten unter den gewählten Versuchsbedingungen ein vorzeitiges Werkstoffversagen verursachen. Die Ergebnisse der Fraktographie sprechen dafür, dass es tendenziell mit steigender Aggressivität der Prüfbedingungen, aber unabhängig vom Vorhandensein des molekularen Wasserstoffs, zu einer verstärkten Versprödung der Werkstoffe L80 und P110 kommt.

Insgesamt unterstützen die Resultate aller durchgeführten Versuche die Annahme, dass es unter den getesteten Bedingungen zu keiner zusätzlichen Versprödung durch die Einwirkung von gasförmigem Wasserstoff kommt.

# 7.5 Aufgabenstellung Zement

Für die Zemente war es wichtig festzustellen, ob diese durch die Exposition zu Wasserstoff in wässriger Lösung eine Änderung in ihrer Permeabilität, Dichte oder Zusammensetzung zeigen. Um dies zu festzustellen wurden Permeationsversuche vor und nach der Exposition sowie röntgendiffraktographischen Untersuchungen (XRD) Messungen durchgeführt. Da die Permeationsversuche denen der Kerne aus den Durchbruchversuchen gleichen, wird an dieser Stelle von einer neuerlichen Beschreibung abgesehen.

# 7.6 Inhaltliche Darstellung Zement

Es wurde die gleiche Methodik wie bei der Untersuchung des Deckgebirges angewendet. Beschreibung siehe (Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.).

# 7.7 Ergebnisse und Schlussfolgerungen Zement

Vor der Beurteilung der Ergebnisse ist anzumerken, dass es nicht möglich war, Zementproben mit der gleichen Verdichtung herzustellen, wie sie tatsächlich im Bohrloch eingebaut werden. Die Dichte ist geringer und die Permeabilität deutlich höher als bei Aushärtung unter entsprechenden Druckverhältnissen. Für die Laborversuche wurde das jedoch in Kauf genommen, da durch die Lufteinschlüsse eine höhere Permeabilität bzw. Porosität und damit verbunden eine größere benetzte Fläche entstand. Im Falle einer Reaktion mit dem Wasserstoff würde diese dann stärker ausfallen und sich eindeutiger abgrenzen lassen.

Zur Vorbereitung wurde der Zement in ein PVC Rohr gegossen und nach dem Aushärten aus diesem "Pseudokern" 1 Zoll Plugs geschnitten. Abbildung 78 zeigt exemplarisch einen dieser Kerne.



Abbildung 78 Exemplarischer Zementkern

Die Zementplugs wurden dann mit künstlichem Lagerstättenwasser befeuchtet und in Reaktoren unter Wasserstoff Atmosphäre für mehrere Monate eingeschlossen. Dabei herrschten in den Reaktoren die gleichen Temperaturen und die ähnliche Drücke (40°C und 70 Bar(a)) wie in der Lagerstätte. In regelmäßigen Abständen wurde dann jeweils ein Teil der Zementplugs entnommen und analysiert um auch graduelle Änderungen messen zu können. In Tabelle 23 sind die gemessenen Gaspermeabilitäten vor und nach der Einlagerung aller Kerne zusammengefasst. Beide Messungen wurden unter analogen Versuchsbedingungen durchgeführt.

Tabelle 23	Gaspermeabilitäten der Zementkerne vor und nach der Einlagerungsdauer im
	Vergleich

Einlagerungszeit		Pemeabilität [m²]				
[Monate]	Kern-Nr.	vor Einlagerung	nach Einlagerung			
2	6	1.04 10 <sup>-17</sup>	1.73 10 <sup>-17</sup>			
	8	2.10 10 <sup>-17</sup>	2.55 10 <sup>-17</sup>			
6	4	1.78 10 <sup>-17</sup>	2.25 10 <sup>-17</sup>			
	3	3.97 10 <sup>-17</sup>	4.88 10 <sup>-17</sup>			
12	9	2.21 10 <sup>-17</sup>	1.97 10 <sup>-17</sup>			
14	2	2.26 10 <sup>-17</sup>	9.21 10 <sup>-17</sup>			
	5	2.74 10 <sup>-17</sup>	3.24 10 <sup>-17</sup>			

Die XRD-Messungen zeigten, dass sich der Portlandit im Zement während der Einlagerung in Vaterit umwandelt (XRD Bild) hatte (Ca(OH)<sub>2</sub> <=> CaCO<sub>3</sub>). Dieses Verhalten ist unter dem Begriff Carbonatisierung bei Zementsteinen bekannt. **Abbildung 79** zeigt die Röntgendiffraktogramme der Zementprobe vor und nach der Einlagerung im Vergleich.


Vergleich.

In Abbildung 80 und in Abbildung 81 ist die Zementprobe vor und nach der Einlagerung dargestellt.



Abbildung 80: Zementstein vor der Einlagerung bei 200-facher Vergrößerung.



#### Abbildung 81: Zementstein nach der H<sub>2</sub>-Einlagerung bei 200-facher Vergrößerung

Es wurden in weiterer Folge Blindproben eingelagert, die den Einfluss von Stickstoff und Methan auf die Kerne klären sollten. Diese Experimente zeigten eindeutig, dass die Änderung der Zusammensetzung unabhängig vom Wasserstoff geschieht (**Fehler! Verweisquelle konnte nicht gefunden werden.**). Es wird angenommen, dass die Veränderung auf die Reaktion mit dem CO<sub>2</sub> im Formationswasser bzw. Anmischwasser zurückzuführen ist. Nachdem die Änderung der Permeabilität vor und nach der Einlagerung allerdings nicht signifikant ist, wurde in den Versuchen nachgewiesen, dass die Integrität des Zementsteins, also die Dichtheit, gegenüber Wasserstoff gegeben ist.

Die Gaspermeabilitäten von Wasserstoff, Stickstoff und Erdgas in Zement sind, laut Messung, annähernd gleich.

Diese Ergebnisse stehen im Widerspruch zu Annahmen aus der Literatur und waren damit für das Projekt überraschend (DGMK, 2014). Es konnte nachgewiesen werden, dass bei der Beimengung von Wasserstoff keine neue Zementation der Sonde oder spezielle Maßnahmen zu Schutz derselben notwendig sind.

		Permeabilität [m <sup>3</sup> ]		
Medium	Kern-Nr.	vor Einlagerung	nach Einlagerung	
Methan	10	1.04E-17	3.44E-17	
	11	8.53E-18	2.27E-17	
Stickstoff	12.1	1.04E-17	n.b.*	
	12.2	1.50E-17	1.32E-15*	

Tabelle 24: Änderung der Zementpermeabilität nach der Einlagerung in Stickstoff und

Methan. \*Bei Stickstoff wurde leider der Autoklav zu schnell Druckentlastet weswegen die Kerne brachen (Abbildung 82)



Abbildung 82: Zersplitterter Kern nach Autoklaven Öffnung

## 7.8 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

Im Zuge dieses Arbeitspakets wurde die Diplomarbeit von Dipl.-Ing. Karl Jojo Vidic am Institut für Allgemeine und Analytische Chemie an der Montanuniversität Leoben verfasst. Die Ergebnisse dieser Arbeit wurden auf den folgenden Veranstaltungen präsentiert:

- Kongress und Fachmesse Gas Wasser, 20.04.2016, Wels (A)
- Eurocorr, 13.09.2016, Montpellier (Fr)

## 7.9 Kontaktdaten

LEHRSTUHL FÜR ALLGEMEINE UND ANALYTISCHE CHEMIE Montanuniversität Leoben Dipl.-Ing. Karl Jojo Vidic Franz-Josef-Straße 18 A-8700 Leoben Tel.: +43 3842 - 402 1217 E-Mail: karl.vidic@gmx.at

ROHÖL AUFSUCHUNGS AKTIENGESELLSCHAFT Department UGS Entwicklung und Management Schwarzenbergplatz 16 1015 Wien +43(0)50724-0 www.rag-austria.at

Autoren: K. J. Vidic, M. Pichler, S. Bauer

## 8 Membrantechnologie im Zusammenhang mit Wasserstoffbeimengungen

## 8.1 Aufgabenstellung

Die Hauptaufgabe dieses Arbeitspaketes im Forschungsprojekt Underground Sun Storage war die Entwicklung und die experimentelle Untersuchung eines Verfahrens zur Einstellung bzw. Trennung von Wasserstoff in/aus Erdgas/Wasserstoff-Gemischen.

In der im Forschungsprojekt untersuchten Energiespeicherungsmethode wird der Untertageporenspeicher zur Speicherung höherer Wasserstoffmengen und somit zur Speicherung erneuerbar erzeugter Energie adaptiert. Diese Energie, gewonnen hauptsächlich aus Wind- und Solarkraft, fällt zu unterschiedlichen Zeiten und bei Folglich unterschiedlichen Intensitäten an. werden die gespeicherten Wasserstoffkonzentrationen im Speicher zeitlich und örtlich variieren. Bei einer Ausspeicherung der Wasserstoff/Erdgas-Gemische wird es ebenso zu Variationen in der Wasserstoffkonzentration kommen.

Aus der Sicht eines Erdgasnetzbetreibers ist es hingegen notwendig, die Wasserstoffkonzentration im ausgespeicherten Gas auf ein konstantes und für die Netzinfrastruktur zulässiges Niveau zu bringen. Daraus ergibt sich die Notwendigkeit der Gaskonditionierung an der Schnittstelle zwischen dem bivalent betriebenen Speicher (Speicherung von Erdgas und Wasserstoff) und dem Erdgasnetz. Im Allgemeinen hat eine solche Gaskonditionierung zwei Aufgaben zu erfüllen:

- Ausgleich der Wasserstoffschwankungen im ausgespeicherten Gas zur Erreichung einer gezielten Konzentration im Erdgasnetz [1], wobei der abgetrennte Wasserstoffstrom in den Gasspeicher zurückgeführt wird.
- Reduzierung der Wasserstoffkonzentration auf einen, für das Erdgasnetz zulässigen Wert, wobei der abgetrennte Wasserstoffstrom in diesem Fall einem Wasserstoffverwertungsprozess zugeführt wird (typischerweise zur Erzeugung elektrischer Energie).



Abbildung 83: Einbindung und Funktion einer Wasserstofftrennanlage an einem Porenspeicher

Je nach der Wasserstoffkonzentrationsschwankung im Gasspeicher, der zulässigen Wasserstoffkonzentration im Erdgasnetz und der Zielkonzentration im Erdgasnetz kann die die Wasserstofftrennanlage für die Betriebsweise 1) oder 2) oder für eine Kombination der beiden Betriebsweisen konzipiert werden. Die Funktion und die Integration der Gaskonditionierung an einem Gasspeicher ist in der Abbildung 83 schematisch dargestellt.

Im bestehenden Forschungsvorhaben wurde die Membran-Gaspermeation für das Wasserstofftrennverfahren ausgewählt. Die Auswahl beruht auf den unten angeführten Vorteilen der Membrantechnik für das betrachtete Trennverfahren:

- 1) Hohe Selektivität zwischen Wasserstoff und Kohlenwasserstoffen.
- 2) Kompaktheit, Modularität und geringer Platzbedarf.
- 3) Hohe Prozesssicherheit, Betrieb ohne Chemikalien.
- 4) Kontinuierliches Trennverfahren und einfache Integration mit den Downstream-Prozessen.
- 5) Direkte Nutzung des im Speicher verfügbaren Drucks für die Gastrennung, damit hohe Energieeffizienz.

## 8.2 Inhaltliche Darstellung

Die Aktivitäten im Arbeitspaket sind auf zwei Bereiche aufgeteilt. Im Ersten werden theoretische und auslegungstechnische Grundlagen für den Feldversuch gelegt. Der zweite Bereich beschäftigt sich mit der Errichtung der Wasserstofftrennanlage und mit dem Feldversuch selbst. Der Workflow im Arbeitspaket ist in der unten stehenden Auflistung beschrieben:

Teil 1:

- Kurzstudie über den Stand der Membrantechnik in der Trennung der Wasserstoff/Methan-Gemische,
- Vergleich der Trennparameter der verfügbaren Membranmaterialien für die untersuchte Gastrennaufgabe,
- Auswahl einer geeigneten Membran und Erhebung ihrer Gastrenneigenschaften,
- Modellierung des Trennverfahrens mit den im Labor gewonnen Membranparametern bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen,

• Erhebung der Betriebsparameter für die Auslegung des Feldexperiments,

Teil 2:

- Verfahrenstechnisches und konstruktionstechnisches Detail-Engineering der experimentellen Wasserstofftrennanlage für den Feldversuch,
- Risikoanalysen, Auswahl und Implementierung der Sicherheitstechnik,
- Errichtung der Anlage und Lieferung der Anlage auf den Standort des Feldversuches,
- Inbetriebnahme der Anlage gemeinsam mit verbundenen Gasspeicherkomponenten,
- Gastrennversuch bei unterschiedlichen Feedgasparametern während eines Ausspeicherungszyklus,
- Evaluierung der Prozessperformance und Erhebung der Gastrenneigenschaften der eingesetzten Membran unter Feldbedingungen.

## 8.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Die im ersten Arbeitspakettask durchgeführte Gegenüberstellung unterschiedlicher Membranmaterialien wies auf die Auswahl von anisotropen Polyimid-Hohlfasern hin. Polyimide charakterisieren sehr hohe Wasserstoff/Kohlenwasserstoff-Selektivitäten (Abbildung 84). Für das Gaspaar Wasserstoff-Methan beträgt die ideale Selektivität etwa 100. Für längere aliphatische Kohlenwasserstoffe weisen Polyimide sogar noch höhere Selektivitätswerte auf. Dies ermöglicht die Realisierung von effizienten Gastrennprozessen. Darüber hinaus sind die oben erwähnten Hohlfasern mechanisch robust und erlauben eine Druckbelastung von über 100 bar. Diese können daher direkt mit dem Druck aus dem Gasspeicher ohne Druckreduzierung betrieben werden.



## Abbildung 84: Relative Permeanzen für Wasserstoff und Kohlenwasserstoffe eines glasartigen Polymers (Polyimide)

Im Folgeschritt wurde eine Membran-Cartridge mit mehreren Tausend Polyimid-Hohlfasern in ein Hochdruckgehäuse installiert und im Technikum der Firma Axiom einer Serie von Reingas-Permeationsversuchen für die Gase H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub> und N<sub>2</sub> unterzogen. So wurden unter Laborbedingungen die idealen Trenneigenschaften der Membran ermittelt.

Die im Technikumversuch gewonnenen experimentellen Daten wurden anschließend für die Kalibrierung des Membran-Simulationstools verwendet. Das Simulationstool basiert auf einer numerischen Finite-Volumen-Methode [2] und ermöglicht detaillierte Modellierung und Optimierung von Membran-Gaspermeationssystemen. Das Tool diente zur Modellierung von mehreren Betriebsfällen der geplanten Wasserstofftrennanlage. Dabei wurde das

Anlagenverhalten bei unterschiedlichen Feedgasparametern numerisch prognostiziert und analysiert. Die Ergebnisse der Prozesssimulation waren die zu erwartenden Betriebsparameter der Anlage im Feldversuch. Diese Daten dienten ebenso als Basis für die Dimensionierung der Nebenkomponenten der Wasserstofftrennanlage und für die korrekte Integration der Anlage mit den Upstream- und Downstreamkomponenten des Gasspeichersystems.



Abbildung 85: Konzentrationsverläufe im Retentatstrom und im Permeatstrom der Wasserstofftrennanlage während eines Ausspeicherungsvorgangs

Ein Modellierungsergebnis eines numerisch simulierten Betriebsfalls ist am Beispiel der Diagramme von Abbildung 85 ersichtlich. Die Diagramme stellen die Konzentrationsverläufe für die Permeat- und Retentatströme während eines Ausspeicherungsversuchs dar. Im präsentierten Beispiel wird die Anlage direkt mit dem Speicherdruck betrieben, dabei ergibt sich eine Druckrampe von 68 bar auf 28 bar. Die Anlage bereitet 400 Nm<sup>3</sup>/h Erdgas mit dem konstanten Wasserstoffgehalt von 10% (v/v) auf. Das Ziel ist den Wasserstoffgehalt auf mindestens 4% (v/v) Wasserstoff (Maximalwert in der ÖVGW G31) im ins Netz eingespeisten Gas zu reduzieren. Im Modell werden in diesem Fall keine Prozessregelungsvorgänge simuliert, um die Gaskonzentrationen in Permeat und Retentat auszugleichen. Die resultierende Methanausbeute im Retentatstrom beträgt etwa 90%. Die Wasserstoffausbeute im Permeat variiert dabei je nach Speicherdruck zwischen 70% und 98%.



Abbildung 86: experimentelle Membrananlage zur Trennung von Wasserstoff/Erdgas-Gemischen im Forschungsprojekt Underground Sun Storage

Die für das Forschungsprojekt errichtete Wasserstofftrennanlage wurde als Container-Einheit konzipiert. Es handelt sich dabei um einen standardisierten ISO-Container mit einer Sonderlänge von 7 m. Der Container beinhaltet ein Polyimide-Hohlfasernmodul samt aller für den Betrieb notwendigen Nebenkomponenten wie etwa ein Aktivkohlebett, Gasfilter und ein Gaserhitzer. Der nominale Durchsatz der Anlage beträgt 400 Nm<sup>3</sup>/h. Die Druckstufe ist 100 bar. Vom Platzbedarf her ermöglicht der Container die Einhausung von 4-5 weiteren Modulen und somit eine Erweiterung der Gasaufbereitungskapazität auf etwa 2000 Nm<sup>3</sup>/h. Die Versuchsanlage wurde in der Montagehalle der Firma Axiom konstruiert und anschließend zur Feldversuchsanlage der RAG in Oberösterreich geliefert.

Für die vollständige Bilanzierung des Versuchs wurden Durchflussmessungen sowie Gasanalysatoren implementiert. Die Gasanalyse erfolgte mittels einer Schallgeschwindigkeitsmessung für die Bestimmung Wasserstoffgehalt und vom Infrarotsensoren für die Bestimmung von Methanund Kohlendioxidgehalt. Die Gasanalysatoren konnten dank einer Weiche abwechselnd für die Messungen von Retentat und Permeat angewendet werden. Die Feedgaszusammensetzung wurde mit Hilfe von einem, der Wasserstofftrennanlage vorgeschalteten, Gaschromatographen bestimmt.

Der Feldversuch fand während der Gasauspeicherungsphase zwischen November 2016 und Januar 2017 statt. In dieser Periode wurden mehrere Betriebsweisen der Anlage experimentell untersucht. Die Versuchsergebnisse für einen Betriebsfall, in dem es sich um eine Reduzierung von einem 9% (v/v) Wasserstoffpeak auf dem ÖVGW-Wert handelte, ist in der Abbildung 87 ersichtlich. Dabei erreicht die Anlage eine Methanausbeute von 93% im Retentat. Der Wasserstoffgehalt im Permeat beträgt etwa 54% (v/v) bei einer Wasserstoffausbeute von etwa 60%.



Abbildung 87: Trennparameter der Anlage in einem Wasserstoffausgleichsbetrieb



Abbildung 88: Trennparameter der Anlage in einem Wasserstofftrennbetrieb

Abbildung 88 fasst Betriebsparameter für einen Betriebsfall, in dem es sich um die Maximierung der Wasserstoffausbeute handelt, zusammen. Die erreichte Wasserstoffausbeute im Permeat beträgt dabei 83%, der Wasserstoffgehalt 34% (v/v). Der Wasserstoffgehalt im Retentat konnte auf etwa 2% (v/v) für die Netzeinspeisung reduziert werden.

Zusammenfassend haben die durchgeführten Feldversuche die Funktion der Wasserstoffgehalteinstellung für das untersuchte Energiespeichersystem nachgewiesen. Die aus dem Versuch gewonnenen Daten dienen als fundierte Basis für das Engineering erster Pilotanlagen und für die Entwicklung optimierter Konzepte zur Regelung der Wasserstoffkonzentration in Erdgasnetzen.

## 8.4 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

[1] S. Bauer, M. Prem, J. Szivacz, Device and method for storing and distributing renewable energy, EPO 2016.

[2] A. Makaruk, Numerical modeling, optimization and design of membrane gas permeation systems for the upgrading of renewable gaseous fuels, Dissertation, Vienna University of Technology 2011.

[3] A. Makaruk, J. Szivacz, S. Bauer and L. Schlegl, Key role of membrane gas separations in the utilisation of an underground natural gas reservoir for the renewable energy storage, Proceedings of GPA Spring Conference 2016, Making Natural Gas the Sustainable Fuel of the Future, 20-22 April 2016, Paris

## 8.5 Kontaktdaten

Axiom angewandte Prozeßtechnik GmbH Dr. Aleksander Makaruk Wiener Straße 114 Halle I-J 2483 Ebreichsdorf, Austria Tel: 0043 2254 762 82 Fax: 0043 2254 746 75 E-Mail: a.makaruk@axiom.at Website: www.axiom.at

Autor: A. Makaruk

## 9 In-Situ-Feldversuche

## 9.1 Aufgabenstellung

Ein entscheidender Teilbereich des Projektes Underground Sun Storage war die erneuerbarer Demonstration der Speicherbarkeit von Energie in Form von Wasserstoffbeimengungen unter realen Bedingungen eines wissenschaftlichen Feldtests. Dies ist von besonderer Bedeutung, da Laborversuche und Modelle zwar einerseits fundamentale Aussagen liefern können, aber andererseits auf Grund vereinfachter Annahmen und Randbedingungen nie ein vollumfassendes Bild geben können was eine Verifizierung notwendig macht. Die Entscheidung zur Durchführung dieses weltweit einzigartigen Feldversuches erfolgte jedenfalls auf Basis belastbarer Ergebnisse aus Laborversuchen, die die Integrität des Speichers unter schärferen Bedingungen hinsichtlich der Wasserstoffbelastung (Vergleich: 25-100% Wasserstoffanteil im Labor zu 10% Wasserstoffanteil im Feldversuch) bestätigt haben. Der Wasserstoffanteil von 10% wurde aufgrund diverser regulatorischer Vorgaben in Europa gewählt.

Bereits im Vorfeld wurde eine geeignete kleine und isolierte Lagerstätte ausgewählt, die geologisch und geophysikalisch gut mit den kommerziellen Speichern der RAG vergleichbar ist aber andererseits eine Versuchsdurchführung mit vertretbarem Aufwand zulässt.

Es handelt sich dabei um die Lagerstätte Lehen-002 im Bezirk Vöcklabruck, Oberösterreich. Beim Lagerstättengestein handelt es sich um einen litharenitschen Sandstein mit schwach karbonatischer nicht zementierter Matrix. Dieser Sandsteinkörper ist durch Tongestein umschlossen und liegt isoliert in den seichteren Schichten der Molassezone (Haller Serie) in rund 1.022 Metern Tiefe. In der Lagerstätte herrschte ein Initialdruck von 107 bar. Die Permeabilität beträgt 700mD. Für den Versuch wurde die Lagerstätte in einem Druckbereich von 30 bis 78 bar(a) betrieben. Die Lagerstättentemperatur beträgt etwa 40 °C. Es handelt sich um eine Süßgaslagerstätte (pH-Wert 8,1) mit geringer Salinität (14.000 mg/l NaCl). Eine Kommunikation mit anderen Schichten oder ein aktiver Aquifer kann aufgrund des volumetrischen Verhaltens der Lagerstätte ausgeschlossen werden. Des Weiteren wird die Lagerstätte nur von einer einzigen bestehenden Sonde erschlossen, was einer wissenschaftlichen Betrachtung sehr entgegen kommt, da dadurch die Ein- und Austrittsparameter klar definiert werden können. Die Lagerstätte ist mit einem Gasvolumen von ca. 6 Mio. Nm<sup>3</sup> äußerst klein und ermöglichte daher einen Test unter realen Bedingungen und mit vertretbarem Aufwand.

## 9.2 Vorbereitung, Planung und Errichtung der Versuchsanlage

Zur Vorbereitung des Feldversuches wurde eine Vielzahl von Messungen gemacht, um die Eignung der Lagerstätte für diesen Feldversuch zu bestätigen und den Ist-Zustand der Lagerstätte mit Basismessungen vor dem Versuch möglichst genau darzustellen. So wurden schon zu Beginn des Projektes Druck und Temperatur Messgeräte in der Sonde eingebaut um die natürliche Änderung von Druck und Temperatur in der Lagerstätte zu beobachten. Mittels Wasserproben wurde der geochemische Zustand der Lagerstätte bestimmt. Dieser wurde durch eine geologische Kurzstudie unterstützt, die die zu erwartende mineralogische Zusammensetzung der Lagerstätte aufgrund von analogen Lagerstätten definierte. Die Wasserprobe wurde ebenfalls verwendet um das existierende mikrobiologische Konsortium in der Lagerstätte zu bestimmen.

Darüber hinaus wurden ein Injektionstest, ein Produktionstest, sowie Analysen des noch in der Lagerstätte vorhandenen Erdgases durchgeführt, um die grundsätzliche Eignung der Lagerstätte als Speicherformation zu bestimmen sowie etwaige Schäden oder die Produktion messen. Außerdem Verwässerungen durch zu wurde mittels Druckaufbaumessung die Ausdehnung, das Volumen, und die Heterogenität der Lagerstätte die aufgrund der Produktionsgeschichte angenommen wurde, verifiziert bzw. wo notwendig modifiziert.

Eine Beweissicherung am Sondencasing wurde mittels Ultraschallmessung, an der Zementation mittels Logmessung durchgeführt. Der ursprünglich als Produktionssonde ausgeführte Aufschluss der Lagerstätte wurde soweit möglich an den Standard einer Speichersonde angeglichen.

Neben den beschriebenen Vorbereitungsmaßnahmen war die Planung, Genehmigung und Errichtung der Obertageanlagen abzuwickeln. Die Obertageanlagen bestehen im Wesentlichen aus einem Verdichter, der das Gasgemisch in die Lagerstätte drückt, einer Elektrolyseanlage zur Wasserstofferzeugung sowie diversen Messanlagen und Hilfssystemen. Abbildung 89 zeigt eine systematische Übersicht der Anlage.



Abbildung 89: Schematische Anlagenübersicht – Hauptanlagen (Quelle: RAG)

Sämtliche Anlagen wurden nach geltenden gesetzlichen Bestimmungen genehmigt, wobei eine Vielzahl an Rechtsmaterien betroffen war. Die Anlage wurde in einer Bauzeit von rd. 5 Monaten errichtet und anschließend in Betrieb genommen.

## 9.3 Versuchsdurchführung

Im Rahmen des Projektes Underground Sun Storage wurde ein kompletter Speicherzyklus bestehend aus Einspeicherphase, Einschlussphase und Ausspeicherphase realisiert. Dabei wurde Erdgas mit ca. 10% Wasserstoff versetzt und in die Versuchslagerstätte eingebracht. Dieser Vorgang dauerte rund 3 Monate. In der rund 4 Monate dauernden Einschlussphase wurden lediglich punktuell Gasproben entnommen. Anschließend erfolgte über einen Zeitraum von ca. 3 Monaten die Entnahme des Gasgemisches. Während des Versuches wurden die Gasmengen über Blendenmessungen und die Gasqualitäten über Gaschromatographie aufgezeichnet. Eine Vielzahl weiterer Datenpunkte wurde erfasst. In der Versuchsanlage wurden zusätzlich unterschiedliche Materialien und Werkstoffe dem Gasstrom ausgesetzt und anschließend analysiert. Während des gesamten Feldversuches außergewöhnlichen Betriebszustände, Schäden konnten keine oder unerwartete Versuchsverläufe festgestellt werden. In den folgenden Abschnitten wird auf einzelne Ergebnisse und Versuchsauswertungen eingegangen.

## 9.4 Wasserstoffbilanzierung

### 9.4.1 Ausgangssituation

Die Wasserstoffbilanzierung war einer der zentralen Aufgabenstellungen im Feldversuch. Durch geeignete Mengenmessungen und Gasqualitätsmessungen wurden die erforderlichen Daten erfasst.

Insgesamt wurden 1,22 Mio. Nm<sup>3</sup> Gasgemisch in die Erdgaslagerstätte Lehen eingebracht. Davon waren 115.444 Nm<sup>3</sup> Wasserstoff. Nach der Einschlussphase wurden 1,24 Mio. Nm<sup>3</sup> entnommen. Davon waren 94.549 Nm<sup>3</sup> Wasserstoff. Daraus ergibt sich eine Fehlmenge Wasserstoff von: 20.895 Nm<sup>3</sup>. Neben Wasserstoff und Methan wurden mittels Gaschromatographie folgende Komponenten erfasst:

#### Tabelle 25:Detektierte Gaskomponenten im Speichergas des Testspeichers Lehen (\* hier handelt es sich um eine Querempfindlichkeit mit Methanol welches zur Vermeidung von Hydratbildung dem Gasstrom beigemengt wurde)

Komponente	Schwankungsbereich Anteil [Vol.%]
Kohlendioxid [CO2]	0,22 – 0,01
Stickstoff [N2]	0,48 – 0,45
Ethan [C2H6]	0,41 – 0,39
Propan [C3H8]	0,3* - 0,13
C4+	0,014-0,013
Gesamtschwefel	0

Im Folgenden wird die bilanzielle Veränderung der Gaszusammensetzung und deren Verlauf über die Zeitachse interpretiert.

#### 9.4.2 Wasserstoff Produziert

Insgesamt konnten rund 82% des eingebrachten Wasserstoffvolumens wieder entnommen werden. Da das entnommene Gas einen zu hohen Wasserstoffanteil hat, um laut Norm ins Erdgasnetz eingespeist zu werden, wurde es noch mit Gas aus anderen Anlagen der RAG vermengt sodass bei der Einspeisung in das Erdgasnetz der Wasserstoffanteil bei unter einem Prozent lag.

#### 9.4.3 Wasserstoff Diffundiert

Am Ende der Produktionsphase war der Wasserstoffanteil im Gas noch immer bei ~3%. Zu diesem Zeitpunkt war schon das gesamte eingebrachte Gasvolumen, aber eben nicht das Wasserstoffvolumen wieder entnommen. Somit war klar, dass Wasserstoff in das bereits in der Lagerstätte vorhandene Kissengas migriert war. Zu erklären ist das dadurch, dass zwischen dem eingebrachten Gas und dem Kissengas ein Sättigungsgradient herrscht (vereinfacht 10% H<sub>2</sub> auf der einen und 0% H<sub>2</sub> auf der anderen Seite). Ein geschlossenes System tendiert jedoch immer hin zu einem Gleichgewicht. Deswegen diffundierte Wasserstoff aus dem gesättigten Gas in das ungesättigte. Würde man diesen Prozess seinen Lauf lassen und das gespeicherte Gas nicht mehr entnehmen, so würde sich über kurz oder lang eine gleichmäßige Verteilung des Wasserstoffes durch die ganze Lagerstätte ergeben. Um nun die Menge an Wasserstoff, der ins Kissengas diffundiert ist, zu quantifizieren, wurde der Abfall der Wasserstoffkonzentration im letzten Drittel der Produktion mittels verschiedener Funktionen geglättet und dann extrapoliert (

Abbildung **90**). Je nach verwendeter Glättungsfunktion konnte damit rechnerisch ein Anteil von 4-5 Prozent der eingebrachten Wasserstoffmenge bilanziert werden.



Abbildung 90: Verlauf der Wasserstoffkonzentration über den Speicherstand

Die Diffusion von Wasserstoff in die umliegenden Gesteinsschichten wurde nicht berücksichtigt. Hier ist zwar ebenfalls ein Konzentrationsunterschied vorhanden. Jedoch ist der Porenraum diese Gesteinsschichten zu 100% wassergefüllt, weswegen hier die entscheidende Größe die Wasserlöslichkeit von Wasserstoff ist. Diese wird in Absatz 9.4.5 behandelt.

#### 9.4.4 Wasserstoff Konvertiert

Schon aus der Literatur und den Laborversuchen war bekannt, dass es in der Lagerstätte zu Reaktionen von Wasserstoff und dort vorhandenen Elementen kommen könnte. Unter anderem sind die Reaktion von Wasserstoff und Kohlendioxid hin zu Methan (Methanogenese) und die Reaktion von Wasserstoff und Schwefel hin zu Schwefelwasserstoff bekannt.

Die Kohlendioxidkonzentration im ausgespeicherten Gas fiel, ähnlich der Wasserstoffkonzentration während der Produktionsphase sukzessive ab (Abbildung 91).



#### Abbildung 91: Verlauf der Kohlendioxid Konzentration über den Speicherstand

Es wurde eine Kohlendioxid Bilanz erstellt, um die Menge an umgewandeltem Kohlendioxid zu bestimmen. Daraus ergab sich dann ein Potential für die Umwandlung von Wasserstoff, das rechnerisch den Verbleib von weiteren 3% des eingebrachten Wasserstoffes erklärt. Hierbei handelt es sich um einen mikrobiologischen Prozess. Eine chemische Methanogenese kann bei den geringen Temperaturen (40°C) und Drücken (~78 Bar(a)), die in der Lagerstätte vorherrschen, nicht ablaufen. Mikroben dienen hierbei als Katalysator und verstoffwechseln den Wasserstoff in der hydrogenotrophen Methanogenese zu Methan. Dieser Prozess konnte auch mittels Isotopenmessung der Fa. Isodetect nachgewiesen werden. Zusätzlich ist aber noch zu bemerken, dass die CO<sub>2</sub> Bilanz ja nur das eingebrachte Gas einschließt. In der Lagerstätte Lehen war bereits vor Beginn des Feldtests Erdgas mit einem CO<sub>2</sub> Anteil von 0,2 Vol.-% vorhanden. Außerdem ist auch noch CO<sub>2</sub> in dem in der

Lagerstätte befindlichen Lagerstättenwasser gelöst. Berechnet man diese Mengen grob, so ergibt sich ein weit höheres Potential zur Umwandlung von Wasserstoff, welches aber nicht exakt bewertet werden kann.

Aus der Literatur gibt es große Bedenken, dass der eingebrachte Wasserstoff mit in der Lagerstätte vorhandenem Schwefel aufgrund von mikrobiologischen Prozessen reagieren könnte. Auch in der Lagerstätte von Lehen gibt es potentiell Schwefel gelöst im Lagerstättenwasser (SO<sub>4</sub>) und als Feststoff in der Form des Minerals Pyrit. Auch schwefelreduzierende Bakterien (SRB) konnten von der IFA Tulln im Lagerstättenwasser detektiert werden. Deswegen wurde auch der Anteil von Schwefelwasserstoff im Produktionsgas durchgehend gemessen. Jedoch konnte während des gesamten Feldversuches kein Schwefelwasserstoff im Gasstrom festgestellt werden.

Abgesehen von der hydrogenotrophen Methanogenese kann das Reaktionspotenzial von Wasserstoff in der Lagerstätte als gering eingestuft werden. Das untermauern auch die Druck- und Temperaturaufzeichnungen aus dem Feldtest. Wäre es zu größeren Reaktionen gekommen, so hätten diese Energien freigesetzt, die zu einem Anstieg der Lagerstättentemperatur geführt hätten. Wie man jedoch auf Abbildung 92 sehen kann, bleibt die Temperatur in der Lagerstätte nahezu konstant.



## Abbildung 92: Vergleichender Verlauf der Temperatur während des Feldversuches und in der Vorbereitungsphase

Außerdem wurde anhand des Gesetzes von Boyle-Mariotte der Druckverlust aufgrund der Volumensänderung die mit der Konvertierung einhergeht berechnet (vgl [6]). Dieser konnte mit 1,3 Bar berechnet werden. Vergleicht man das mit dem Druck vor Beginn der Einspeicherung (32 Bar(g)) und nach der Entnahme (30 Bar(g)) so scheint die Annahme doch recht akkurat.

#### 9.4.5 Wasserstoff Gelöst

Gemäß Literaturangaben ist die Löslichkeit von Wasserstoff in Wasser sehr gering, jedenfalls geringer als Methan. Allerdings wurden während des Projektes Underground Sun Storage neue Erkenntnisse im Projekt H<sub>2</sub>Store publiziert, die einen Hinweis darauf lieferten, dass dieses Thema neu zu bewerten ist. So konnte nachgewiesen werden, dass die Löslichkeit von Wasserstoff sehr stark von der Menge und der Art der im Wasser gelösten Ionen abhängt. Entsprechend kann die Löslichkeit in einem relativ breiten Bereich schwanken. Für das Projekt Underground Sun Storage wurden 2 Löslichkeitsmodelle verwendet um die Menge an gelöstem Wasserstoff abzuschätzen (vgl. [5]). Die Menge des zur Lösung verfügbaren Wassers wurde aufgrund der Wassersättigung in den Poren des Wasserstoffbenetzten Raumes mit ~9850m<sup>3</sup> berechnet. Verwendet man für die Löslichkeit das Modell von Lassin (vgl. [5]) so ist die Lösung von bis zu 10% des initial eingebrachten Wasserstoffvolumens denkbar. Dieses Model liefert für gering salinare Fluide recht gute Ergebnisse, ist aber empirisch bestimmt und vermutlich auch von der Reaktion von Wasserstoff mit den im Wasser gelösten Ionen beeinflusst. Das von De Lucia (vgl. [4]) entwickelte Model sagt eine Löslichkeit von rund 7,5% des eingebrachten Volumens voraus. Hier ist allerdings anzumerken, dass dieses Modell vor allem im Niederdruckbereich schwer anwendbar ist und außerdem für Systeme gilt, die eine signifikant höhere Salinität aufweisen als das Wasser der Lagerstätte Lehen (Vergleich 14.000 ppm NaCl zu 200.000 ppm NaCl). Zu guter Letzt sei hier auch noch die Henry Konstante erwähnt, die einen Wert für die Löslichkeit von Reinstoffen in Kondenswasser angibt. Berechnet man mit dieser das gelöste H<sub>2</sub> Volumen so kommt man auf einen Wert, der um einen Faktor 10 geringer ist als der von den anderen verwendeten Modellen (0,88 % des eingebrachten Volumens). Hier sehen wir den Bedarf weiterer Untersuchungen.

## 9.5 Mikrobiologie

#### 9.5.1 Probenahme Formationswasser vom Testfeld

Zur Charakterisierung des mikrobiologischen Konsortiums im Erdgasspeicher sowie auch zur Gewinnung eines Inokulums für die Hochdruck-Bioreaktoren (siehe Kapitel 6) erfolgten verteilt über den gesamten Projektzeitraum mehrere Probenahme-Kampagnen. Die Entnahme der Proben erfolgte gemeinsam mit dem RAG Messtrupp, welcher technische Maßnahmen wie z.B. Wasserspiegelmessung, Bailerfahrt, etc. an der Sonde durchführte. Zur Probenahme wurde ein Bailer eingesetzt (siehe Abbildung 94), welcher zuvor entsprechend gereinigt wurde. Vor Einbringung des Bailers in die Schleuse wurde Sauerstoff weitgehend entfernt. Das Entnahme-Volumen des Bailers lag bei ca. 1,8 Liter. Die Teufe für die Probenahme bewegte sich um die 1200 m TVD. Nach erfolgter Probenahme wurde das Lagerstättenwasser unter ständiger Argon-Begasung in sterile Pyrex-Flaschen überführt (siehe Abbildung 93).



Abbildung 93: Abfüllung des Lagerstättenwassers (Quelle: BOKU Wien (RAG)



Abbildung 94: Probennehmer vor Einfahrt in die Schleuse (Quelle: BOKU Wien (RAG)

Die verwendeten Methoden für die DNA Extraktion findet man im Kapitel 6.2.3.3, für die hydrochemischen Analysen im Kapitel 6.2.3.1.

#### 9.5.2 Änderung des mikrobiellen Konsortiums im Testfeld

In der Abbildung 95 sind die Verschiebungen des mikrobiellen Konsortiums im Formationswasser des Testfeldes dargestellt. Die Zuordnung der vorhandenen Phyla erfolgte auf Basis der DNA-Sequenz, aktive Mikroorganismen wurden über den Nachweis der entsprechenden RNA-Sequenzen erfasst. Die Farbgebung der einzelnen Phyla ist deckungsgleich wie im Kapitel 6.3.3 (Abbildung 71) – "Verschiebungen der Konsortien bei Wasserstoffexposition in den Reaktoren". Gut zu erkennen ist die Dominanz der fermentativen Bakterien (grüne Balken), hier sind ebenfalls Untergruppen der Schwefel- und der Sulfat-Reduzierer (gelbe-grüne Balken) zu finden. Die methanogenen Euryarchaeota sind in pink dargestellt, die fermentativen Euryarchaeota in grün. Diese umfassen die Klasse der Thermoplasmata und zählen zu den Extremophilen, da sie von heißen Quellen, sowie bei Anwesenheit von mineralischem Pvrit bzw. Sulfataren Arsenopvrit (Erzlagerstätten) isoliert wurden (vgl.[1]). Vergleicht man die einzelnen Konsortien (DNA), so ist für alle fünf Probenahme-Kampagnen (November 2013, April 2015, Oktober 2015, November 2016 und März 2017) der Anteil an fermentativen Bakterien (grün) inklusive Sulfat-reduzierenden Bakterien (gelb-grün) gleichbleibend. Das darin enthaltene Phylum der Thermotogae ist ursprünglich von Erdölfeldern isoliert worden (vgl. [2]). Mit der Probenahme-Kampagne im November 2016 ist das Phylum der Atribacteria neu hinzugekommen, welches aus anoxischen Sedimenten mit Methanproduktion isoliert wurde. Es wird vermutet, dass diese Mikroorganismen eine syntrophe Verbindung mit den Methanogenen eingehen können (vgl. [3]).



Abbildung 95: Verschiebungen des mikrobiellen Konsortiums im Formationswasser des Testfeldes. Darstellung auf Phylum-Ebene (Quelle: BOKU)

Betrachtet man die Beprobung vom November 2016, so sind die größten Verschiebungen im mikrobiellen Konsortium bei einem Vergleich von RNA und DNA zu finden. Diese Probenahme erfolgte im Ausspeicherungszyklus um damit den größtmöglichen Anteil an originärem Formationswasser aus der Sonde zu gewinnen. Auch wenn Methanogene nicht die Hauptmenge an vorhandenen Mikroorganismen ausmachen (siehe Abbildung 95), so nehmen sie doch einen Anteil von bis zu 60 % an der Gesamtheit der im Erdgasspeicher **aktiven Mikroorganismen** ein. Die **RNA-basierten Konsortien** der zwei verschiedenen Teufen (1200 m TVD und 1350 m TVD) zeigen, dass die Methanogenen die dominante Gruppe in dieser Betriebsphase des Testfeldes waren und deshalb eine Bildung von Methan zu erwarten ist ( $CO_2 + 4H_2 -> CH_4 + 2H_2O$ ). Dies ist möglich, da bei der Einspeicherung von Wasserstoff ein Trägergas (Erdgas) eingesetzt wurde, welches einen Kohlendioxid Gehalt von 0,2 Vol.-% aufwies (Abbildung 91).



Abbildung 96: Vergleich des Anteils an vorhandenen (DNA) und aktiven (RNA) Methanogenen am mikrobiellen Konsortium im Formationswasser des Testfeldes (Quelle: BOKU)

Aus dem mikrobiellen Konsortium im Formationswasser des Testfeldes lassen sich verschiedene Potentiale der Wasserstoff Zehrung ableiten. Bei Einbringung von Schwefel oder Sulfat können diese Elektronenakzeptoren unter Verbrauch von Wasserstoff zu unerwünschtem Schwefelwasserstoff reduziert werden. Gleichzeitig würde der Anteil von Sulfat reduzierenden Bakterien steigen, mit einhergehenden korrosiven technischen Begleiterscheinungen. Bei Vorhandensein von Kohlendioxid kann dieses zusammen mit Wasserstoff mikrobiell zu Methan umgewandelt werden (hydrogenotrophe Methanogenese), jedoch kann auch Acetat gebildet werden (Homoacetogenese). Die Homoacetogenese kann eine pH Absenkung und damit eine Verschiebung des chemischen Gleichgewichts bewirken, welche verschiedene Prozesse verstärken kann (Lösungsprozesse der Mineralmatrix, Verschiebung des mikrobiellen Konsortiums). Ob Wasserstoff in Gegenwart von Kohlendioxid zur Bildung von Methan oder Acetat herangezogen wird, ist von verschiedenen Faktoren abhängig (pH. Konzentration der Gaskomponenten, vorhandenes mikrobiologisches Konsortium, Spurenelemente und Nährstoffe, etc.) und Bedarf einer sorgfältigen Voruntersuchung des zur Einspeicherung gewählten Gasfeldes (siehe Kapitel 6).

#### 9.5.3 Hydrochemische Resultate des Formationswassers

In Abbildung 9-4 sieht man den Verlauf von pH Wert, Chlorid, Sulfat und Acetat im Formationswassers des Testfeldes. Zur korrekten zeitlichen Darstellung der Probenahme Zeitpunkte wurde die x-Achse auf "Tage" skaliert. In

sind die Tage der entsprechenden Probenahme-Kampagne zugeordnet, die orange Hinterlegung indiziert die Probenahme zum Zeitpunkt der Ausspeicherung.

Probenahme Zeitpunkt Testfeld	
(Teufe m)	Tage
Sept. 2013 (1200 m)	0
Nov. 2013 (1200 m)	57
April 2015 (1438 m)	565
Okt. 2015 (1430 m)	749
Nov. 2016 (1350 m)	1162
März 2017 (1194 m)	1260

Der Chlorid Gehalt zeigt eine leichte Steigung, welche auf Sonden Überholungen des Testfeldes mit Kaliumchlorid zurückzuführen ist. Der Sulfat Gehalt der ersten zwei Probenahme Kampagnen lag bei 16 und 36 mg/L, der darauf folgende abnehmende Trend zeigt eventuell einen mikrobiellen Verbrauch des gelösten Sulfats, da die Nachlieferung aus der Bohrspülung nicht mehr gegeben ist und im Reservoir kein Sulfat hältiges Mineral vorkommt, auch ein möglicher Verdünnungseffekt durch Sondenüberholung bzw. frisches Formationswasser kann in Betracht gezogen werden. Die Leitfähigkeit ist steigend (Sondenüberholung mit KCI) bis auf die letzte Probenahme im März 2017, das könnte auf originäres Lagerstättenwasser hinweisen. Der pH-Wert senkte sich beim Ausspeichern von pH 8,7 (November 2013) auf pH 8,65 (April 2015) auf pH 8,4 (November 2016) und auf pH 8 (März 2017). Mikrobiologische pH absenkende Prozesse aufgrund von Wasserstoffzehrung wurden jedoch keine festgestellt, da der Acetat Gehalt ein Jahr vor dem Speicherversuch (April 2015) bei ~100 mg/L lag und im März 2017 ebenfalls bei ~100 mg/L (Abbildung 97). Damit ist eine signifikante Homoacetogenese unwahrscheinlich.





#### 9.5.4 Änderung der Lagerstättenparameter

Während des gesamten Versuches konnte kein Zurückgehen der Permeabilität der Lagerstätte, das auf einen mikrobiellen Massenzuwachs und damit einhergehendes Zuwachsen des Porenraumes schließen lässt, beobachtet werden. Im Gegenteil konnte der für den Speicherbetrieb typische Anstieg der Permeabilität auf Grund von Austrocknungseffekten im sondennahen Bereich dokumentiert werden.

Die Zusammensetzung des Lagerstättenwassers sowie der pH-Wert im Wasser wurden im Feldversuch ebenfalls geringfügig verändert. Diese Änderungen konnten jedoch im selben Umfang während der Laborversuche der IFA Tulln beobachtet werden. Somit sind sie für das Projekt nur ein weiterer Indikator dafür, dass mikrobiologische Aktivität in der Lagerstätte stattfindet.

## 9.6 Materialtests

Um die diversen in den Anlagen verwendeten Materialien auch in Realität testen zu können, wurde in der Versuchsanlage des Projektes Underground Sun Storage eine Materialteststrecke installiert, welche es erlaubte, die Materialien während des Versuches dem Gasstrom auszusetzten.

#### 9.6.1 Zement

Sowohl im Labor als auch an den dem Speichergas ausgesetzten Zementproben konnten keine wasserstoffinduzierten Schäden festgestellt werden. Der Vergleich der Messergebnisse zeigt, dass das im Labor beobachteten Verhalten auch im Feldversuch auftritt.

#### 9.6.2 Stähle

Wie auch im Labor gemessen, konnten auch an den Stählen, die für den Feldtest verbaut wurden, keine signifikante Änderung der Materialeigenschaften oder gar Materialschäden festgestellt werden. Es ist somit nachgewiesen, dass ein Wasserstoffanteil von 10% der einen Partialdruck von 10 Bar nicht überschreitet, keine Probleme für die Stahlwerkstoffe bei RAG Speicheranlagen darstellt.

#### 9.6.3 Elastomere

In der Komplettierung sowie auch in der obertägigen Testanlage des Feldversuches waren Elastomerdichtungen während des Versuches eingebaut. Nach Abschluss des Versuches wurden diese wieder entnommen und einer optischen Untersuchung unterzogen, wobei keine Veränderungen festgestellt werden konnten. Außerdem wurden diverse gängige Elastomere im Feldversuch auch in die Materialteststrecke eingebaut. Bei den hier eingesetzten Materialien kam es zu einer Änderung der Masse und Volumina des Materials. Da es jedoch keine Referenzen in der Literatur gibt, sind die Ergebnisse aus dem Feldversuch nur schwer zu interpretieren und man kann nicht eindeutig sagen, welche der Veränderungen auf Wasserstoff zurückzuführen sind. Jedoch zeigten die bei der RAG standardmäßig als Dichtelemente verwendeten Elastomere in den Untersuchungen die geringsten Änderungen.

#### 9.6.4 Sondenintegrität

Wie bereits vor Versuchsdurchführung wurde auch im Anschluss daran eine Beweissicherung am Sondencasing mittels Ultraschallmessung und an der Zementation mittels Logmessung durchgeführt. Beide Messungen zeigen, dass es während des Versuches zu keinen Veränderungen gekommen ist. Es konnte somit bestätigt werden, dass der Wasserstoff auch in diesem Bereich die Integrität der Sonde bzw. des Speichers nicht gefährdet.

## 9.7 Modellierung

Der Feldversuch wurde auch von einer lagerstättentechnischen Simulation begleitet. Ziel war es herauszufinden, inwieweit mit gängigen Softwares die Speicherung von Wasserstoff modelliert und abgebildet werden kann. Dafür sollte ein History Match (HM) für das Feld Lehen basierend auf einem geologischen (statischen) Modell in PETREL zu erstellt werden. Es wurde das Software Paket ECLIPSE 300 compositional (E300) simulation verwendet, um Änderungen durch die Beimengung von Wasserstoff in Erdgas während der Speicherung in die Lagerstätte HP3A von Lehen (Bohrung Lehen 2 (LEH-002); Beginn 15 März 2016) darzustellen.



Abbildung 98: Strukturkarte des HP3 1A im geologischen Model

#### Zusammenfassung

Nach dem geologischen (statischen) Modell der HP3A Lagerstätte in Lehen wurde mit E300 ein History Match erzielt. Das E300 wurde gewählt, da im Feld Lehen ein Gasgemisch von Erdgas und Wasserstoff gespeichert wurde. Erzielt wurde eine gute Übereinstimmung (± 2 bar Druckdifferenz) mit den gemessenen Werten aus der Lagerstätte bis zum Beginn der Injektion vom Erdgas-Wasserstoffgemisch Mitte März 2016. Danach verschlechterte sich der

Match graduell (Druckdifferenz zwischen  $\pm 2$  und 4 bar) zwischen Simulation und gemessenen Werten, wahrscheinlich zurückzuführen auf die Zellengröße von 20mx20mx0,3m (LxBxH). Diese Zellengröße ist viel kleiner als üblicherweise beim Modellierern verwendet wird, aber noch immer zu grob für eine so kleine Lagerstätte, da die Poro-Perm-Änderungen in noch kleineren Abständen stattfinden.



## Abbildung 99: Aktualisierter History Match für den Fall Gasgemisch mit 10 Vol.-% $H_2$ und den Fall reines Erdgas bis 27. Februar 2017

Neben diesen modeltechnischen Problemen wurde aber auch die verwendete Software als unzureichend eingestuft. So war es nicht möglich die Änderungen in der Wasserstoffkonzentration während der Produktionsphase richtig abzubilden. Auch war die Zustandsgleichung, die von der Software verwendet wurde, nicht in der Lage, das Verhalten von Wasserstoff abzubilden (Abbildung 99) und musste mit einer empirischen Approximation angepasst werden. Zu guter Letzt wird auch das Diffusions- und Lösungsverhalten des Wasserstoffes nicht in ausreichender Genauigkeit dargestellt. Es ist somit zusammenfassend zu sagen, dass zur optimalen Simulation des Problems eine Erweiterung der gängigen verwendeten Softwarepakete notwendig ist.

## 9.8 Zusammenfassung der Ergebnisse

Während des gesamten Betriebs des Feldversuches konnten keinerlei Integritätsprobleme, die durch Wasserstoff induziert wurden, festgestellt werden. Ein kontinuierliches Druckmonitoring der möglichen Gas Fließpfade in der Sonde (Tubing, Anulus, Ringraum) konnte beweisen, dass die für den Feldversuch gewählte Komplettierung gasdicht ist.

Eine zusätzliche Bestätigung liefert die Beobachtung des Wasserstoffgehaltes in der Sonde während der Einschlussphase. Während dieser wurden in regelmäßigen Abständen Gasproben gezogen, um die Entwicklung des Gasgemisches in der Lagerstätte beobachten

zu können. Der prozentuelle Anteil des Wasserstoffgases, der dabei immer am Ende der jeweiligen Entnahme gemessen wurde, war niedriger, als der Wert der zu Beginn der nächsten Entnahme gemessen wurde (Abbildung 100). Somit kann zwar von einer möglichen Akkumulation in der Sonde, aber nicht von einer Diffusion aus der Sonde hinaus ausgegangen werden. Es sei hier noch bemerkt, dass bei jeder Probennahme mindestens 1000 Nm<sup>3</sup> Gas gefördert wurden um auch tatsächlich Gas aus der Lagerstätte zu messen und nicht solches, das sich nur im Tubing befand.



#### Abbildung 100: Verlauf der Wasserstoffkonzentration im Tubing mit Vergleich der jeweiligen End- bzw. Anfangskonzentrationen

Als weitere Maßnahme zur Bestimmung der Sonden-Integrität wurden auch vor und nach dem Feldtest sowohl die Qualität der Zementation sowie die Wandstärke des Casings bestimmt. Dabei konnten keine Änderungen festgestellt werden. Eventuelle Abweichungen hätten beim Zement einen Hinweis darauf gegeben, dass Wasserstoff durch den Zement migriert. Beim Casing hätte eine Veränderung der Wandstärke auf Korrosion hingewiesen.

## 9.9 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

Nr.	Studie/ Bericht/ Präsentation	Jahr	Autor
1	Interner Workshop Hychico	2016	RAG
2	Abschlussbericht zum Speicherbetriebsplan "Lehen 2 -	2017	Pichler;
	Speicherstation (Untertage Sonnenspeicher)" Auswertung der		Bauer
	Ergebnisse		
3	ÖVGW Jahrestagung USS- Erneuerbare Energien Untertage	2017	Bauer
	Speichern		
4	Präsentation Ergebnisse DVGW Clustersitzung 2017 E		Bauer

## 9.10 Literaturverzeichnis

- HUBER H., STETTER K.O. (2006): *Thermoplasmatales*, Prokaryotes (2006) 3:101-112
  DOI: 10.1007/0-387-30743-5\_7
- [2] WOLICKA, D., BORKOWSKI, A., (2012): *Microorganisms and Crude Oil*, University of Warsaw Poland, (2012)
- [3] CARR S.A., ORCUTT B.N., MANDERMACK K.W., SPEAR J.R. (2015): Abundant Atribacteria in deep marine sediment from the Adélie Basin, Antarctica, Frontiers Microbiology 2015 Aug 26;6:872. doi: 10.3389/fmicb.2015.00872. eCollection 2015
- [4] Lucia, "Measurements of H<sub>2</sub> solubility in saline solutions under reservoir conditions: preliminary results from project H<sub>2</sub>STORE," European Geosciences Union General Assembly, Potsdam, 2015.
- [5] Lassin und e. al, Hydrogen solubility in pore water of partially saturated argillites: Application to Callovo-Oxfordian clayrock in the context of a nuclear waste geological disposal, Fontenay-aux-Roses, France: Physics and Chemistry of the Earth 36 (2011) 1721–1728, 2011.
- [6] Gesetz von Boyle Mariotte, "Wikipedia," [Online]. Available: https://de.wikipedia.org/wiki/Thermische\_Zustandsgleichung\_idealer\_Gase. [Zugriff am 28 September 2017].

## 9.11 Kontaktdaten

RAG Rohöl – Aufsuchungs – Aktiengesellschaft UGS Subsurface Management Markus Pichler <u>Markus.pichler@rag-austria.at</u> Tel: 0043507245346 Schwarzenbergplatz 16 1015 Wien

UNIVERSITÄT FÜR BODENKULTUR WIEN Department IFA-Tulln Institut für Umweltbiotechnologie a.o.Prof.DI Dr. Andreas P. Loibner Konrad Lorenz Str. 20, A-3430 Tulln Tel.: +43-1-47654-97470 Fax: +43-1-47654-97409 E-Mail: andreas.loibner@boku.ac.at www.boku.ac.at

Autoren: A. Andiappan, M. Pichler, S. Bauer, J. Schritter, A.P. Loibner

## 10 Risikoanalyse und Life-Cycle Assessment

## 10.1 Aufgabenstellung

In Zusammenhang mit der Untersuchung der Wasserstoffverträglichkeit der Untergrundgasspeicher erfolgte eine Risikobeurteilung möglicher Gefahren der Untertage-Wasserstoffspeicherung, wie auch eine Lebenszyklusanalyse der Umweltauswirkungen von realisierbaren Szenarien der Wasserstoffspeicherung.

Die Aufgabenstellung des Risiko Assessment war es, Risiken und Sicherheitsaspekte der Untertage-Wasserstoffspeicherung in einem Porenspeicher mittels Literaturstudie im Hinblick auf zukünftige Unternehmungen dieser Art zu identifizieren und diese nachfolgend mittels Expertenbefragungen zu ergänzen. Das daraus erfolgende Ergebnis soll in einer Aufstellung der identifizierten Risiken und Sicherheitsaspekte der in diesem Projekt angewandten Technologie Ausdruck finden. Auf diesen Ergebnissen aufbauend soll ein qualitatives und quantitatives Risiko Assessment erfolgen, wobei die dadurch gewonnenen Erkenntnisse in einem verbesserten Modell zur Risikoevaluierung der Untertagespeicherung von Wasserstoff Eingang finden sollen. Dieses Modell soll des Weiteren durch eine Monte Carlo Simulation unterstützt werden, um zu einem besseren Verständnis der Auswirkungen kritischer Risiken beizutragen. Mittels der dadurch entwickelten Methodologie können die gewonnenen Daten des Feldversuches verifiziert werden und zu einer generischen Methodologie, für die Evaluierung ähnlicher Projekte, beitragen.

Neben der Risikoanalyse beinhaltet dieser Abschnitt die Durchführung einer ökologischen Bewertung auf Basis eines Life-Cycle Assessments (synonym Ökobilanz, LCA) für potentiell umsetzbare – d.h. wirtschaftlich sinnvolle – Szenarien der Wasserstoffspeicherung, welche aus den ökonomischen Analysen (siehe Kap. 11) herausgearbeitet wurden. Diese Szenarien wurden als Anwendungsfelder definiert und beinhalten unterschiedliche Aspekte hinsichtlich der Wertgenerierung und der potentiellen Kunden. Für die Umsetzung der ökologischen Bewertung und Visualisierung wurde eine spezielle LCA Software eingesetzt. Die Ergebnisse des Life-Cycle Assessments fließen in die Risikoanalyse mit ein.

## 10.2 Inhaltliche Darstellung

Dieser Abschnitt gliedert sich nachfolgend in den Teil der Risiko Assessments und den Teil des Life-Cycle Assessments.

#### 10.2.1 Risikoanalyse

Das Risiko Assessments gliederte sich in eine detaillierte Erhebung aller Systemelemente der Untergrundspeicherung, sowie eine umfassende Literaturrecherche zur Identifizierung, Erfassung und Darstellung von Risiken in einer Gefahrenmatrix. Die erhobenen Daten wurden auf Parallelitäten unter den Systemelementen überprüft um weitere Gefährdungen darstellen bzw. ausschließen zu können.

Die geschaffene Darstellung dieser Risiken und Gefahren diente in weitere Folge als Grundlage einer Befragung von Experten zur Berücksichtigung weiterer Risiken und der Vervollständigung dieser Liste.

Nachfolgend wurden die erhobenen Risiken qualitativ und quantitativ mittels einer "Bow-Tie" Analyse, welche eine Fehlerbaumanalyse (Fault Tree Analysis oder kurz FTA), eine Methode zur detaillierten Fehleranalyse mit Top-Down Ansatz, und eine Ereignisbaumanalyse (Event Tree Analysis oder kurz ETA) kombiniert, analysiert. Modellunsicherheiten, welche auf der Annahme von Unabhängigkeiten zwischen den verschiedenen Ereignissen bestehen, wurden durch die Anwendung von Fuzzy-Logic berücksichtigt.

Basierend auf diesen ersten gewonnenen Daten und Erkenntnissen wurden die erhobenen Risiken nochmalig nach dem Vorgehensmodell und der Methodologie des ISO 31000 Risk Management Prozesses überprüft, bewertet und mittels eines eigens dafür entwickelten methodologischen Rahmenwerkes bzw. Vorgehensmodells (Abbildung 101) bearbeitet.



#### Abbildung 101: Vorgehensweise des PtG RA (Tucovic, N. 2017).

Dieses Vorgehensmodell berücksichtigte die bis dahin gewonnenen Informationen und ermöglicht es ebenfalls neu gewonnene Erkenntnisse der anderen relevanten Arbeitspakete

entsprechend zu berücksichtigen. Darauf folgend findet in diesem Modell eine qualitative als auch quantitative Risikoanalyse statt, welche als Ergebnis in einem quantifizierten Bow-Tie Modell Ausdruck findet.

Dieses quantifizierte Bow-Tie Modell wird wiederum einer Monte Carlo Analyse sowie einer Sensitivitätsanalyse zur weiteren Risikoevaluierung unterzogen, um kritische Risiken zu identifizieren und diese mittels Spider Diagramm, Tornado Darstellung, sowie einer FN-Kurve zu visualisieren. Diese Visualisierung dient ebenfalls der Unterstützung der finalen Ergebnisse.

#### 10.2.2 Life-Cycle Assessment

Die ökologische Bewertung basiert auf den Standards ISO 14040:2006 "Umweltmanagement – Ökobilanz – Grundsätze und Rahmenbedingungen" und ISO 14044:2006 "Umweltmanagement – Ökobilanz – Anforderungen und Anleitungen". Demnach beinhaltet die Durchführung einer LCA folgende 4 Phasen:

- (1) Festlegung von Ziel und Untersuchungsrahmen, zur Abgrenzung von Breite, Tiefe und Detaillierung
- (2) Erstellung der Sachbilanz (Life-Cycle Inventory)
- (3) Wirkungsabschätzung (Life-Cycle Impact Assessment)
- (4) Phase der Auswertung.

Die durchgeführte LCA ist um das System "Pilotanlage" aufgebaut, wobei für die Analyse benötigte Daten und Informationen zum Teil aus vorgelagerten Arbeitspaketen herangezogen wurden. Nachfolgendes Fließbild gibt einen Überblick des betrachteten Systems:



# Abbildung 102: Fließbild zur Systemgrenze des USS Projekts (vgl. Sledz, 2017 und Tschiggerl et al. 2017)

In Abstimmung mit dem Projektkonsortium wurden zwei Anwendungsfelder (AF 1 und 7 aus der ökonomischen Analyse) mit wirtschaftlichem Umsetzungspotenzial zur Evaluierung mittels eines Life-Cycle Assessments ausgewählt:

 Speicherung von erneuerbarer Energie in Gas-Porenspeichern (neues Produkt/neuer Markt) a. Dienstleistung - Bereitstellung einer Speichermöglichkeit für Wasserstoff im Porenspeicher

- b. Erneuerbares Speicherprodukt aus dem Porenspeicher
- 2) Herstellung eines neuen erneuerbaren Produkts
  - a. Mixtur aus Wasserstoff und Methan für den Treibstoffmarkt
  - b. Reiner Wasserstoff als Rohstoff für die chemische Industrie

## 10.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

#### 10.3.1 Risiko-Analyse

Die Ergebnisse des Risiko Assessments nach der oben angeführten Methodologie werden wie folgt gegliedert:

a) Ergebnisse der Risikoidentifikation

Die identifizierten Risiken, welche sowohl Obertage- als auch Untertagerisiken berücksichtigen, sind in der Grafik (Abbildung 103) dargestellt und den nachfolgenden Tabelle 27 bis 30 (Tucovic, N 2017) angeführt, und berücksichtigen ebenfalls die Ergebnisse der anderen Arbeitspakete.



Abbildung 103: Vereinfachte Darstellung des Testbeds mit den jeweiligen Beschriftungen der identifizierten Risiken (Tucovic, N. 2017)

FACILITY COMPONENTS RELATED RISKS – ETA				
<u>NO.</u>	THREATS/HAZARDS	<u>NO.</u>	POTENTIAL OUTCOMES	
1	H <sub>2</sub> embrittlement (steel)	1a	Leak valves	
		1b	Leak compressor	
		1c	Leak casing	
		1d	Leak tubing	
		1e	Leak pipes	
		1f	Leak wellhead	
2	Diffusion facility components	2a	Diffusion packers	
		2b	Diffusion pipes	
3	Blistering (elastomers)	3a	Leak packers	
		3b	Leak sealing rings	
4	Corrosion (steel)	4a	Leak valves	
		4b	Leak compressor	
		4c	Leak casing	
		4d	Leak tubing	
		4e	Leak pipes	
		4f	Leak wellhead	
5	Viscous flow cement	5a	Leak cement	
6	Diffusion cement	6a	Leak cement	
7	Nearby wells connected to reservoir	7a	Leak into PILS-001A	
		7b	Leak into PILS-002	
		7c	Leak into LEH-001	
8	Poor abandoned nearby wells	8a	Leak through PILS-001A	
		8b	Leak through PILS-002	
		8c	Leak through LEH-001	

#### Tabelle 27: Identifizierte Risiken im Zusammenhang mit Anlagenkomponenten.

#### Tabelle 28: Identifizierte Risiken im Zusammenhang mit menschlichen Verhalten.

HUMAN RELATED RISKS – ETA			
<u>NO.</u>	THREATS/HAZARDS	<u>NO.</u>	POTENTIAL OUTCOMES
9	Poor SCADA	9a	Overfilling reservoir

		9b	No det. of reservoir irregularities
10	Poor equipment maintenance	10a	Leak due to maintenance
11	Unsuitable material from supplier	11a	Leak due to supplier
12	No quality checking of material	12a	Leak due to supplier
13	3rd party interference, sabotage	13a	Leak due to sabotage
14	Misbehavior from contractors	14a	Leak due to contractor
15	Bad signage	15a	Leak due to misconception

#### Tabelle 29: Identifizierte Risiken im Zusammenhang mit der Umwelt.

ENVIRONMENT RELATED RISKS – FTA			
NO.	THREATS/HAZARDS	<u>NO.</u>	POTENTIAL OUTCOMES
16	Flood	16a	Leak due to flood
17	Subsidence	17a	Leak due to subsidence
18	Earthquake	18a	Leak due to earthquake

#### Tabelle 30: Nicht-Equipment betreffende Risiken.

NON-	NON-EQUIPMENT RELATED RISKS – FTA			
NO.	THREATS/HAZARDS	<u>NO.</u>	POTENTIAL OUTCOMES	
19	Viscous fingering/lateral spreading	19a	Escape from trap	
20	Reservoir not isolated	20a	Escape from trap	
21	Existing fractures	21a	Leak to surrounding rocks	
		21b	Leak up to groundwater and surface	
22	Existing faults	22a	Leak to surrounding rocks	
		22b	Leak up to groundwater and surface	
23	Induced shear fractures	23a	Leak to surrounding rocks	
		23b	Destruction of geological system	
		23c	Leak up to groundwater and surface	
24	Induced hydraulic fractures	24a	Leak to surrounding rocks	
		24b	Destruction of geological system	
		24c	Leak up to groundwater and surface	
25	Induced capillary pressure	25a	Leak to surrounding rocks	
		25b	Leak up to groundwater and surface	
26	Methanogenesis	26a	Loss of gas mixture	
27	Homoacetogenesis	27a	Loss of gas mixture	
28	Sulphate reduction	28a	Loss of gas mixture	

#### Tabelle 31: Identifizierte Risiken im Zusammenhang mit der Zerstörung der Lagerstätte.

DEST	DESTRUCTION OF THE RESERVOIR – FTA			
<u>NO.</u>	THREATS/HAZARDS	<u>NO.</u>	POTENTIAL OUTCOMES	
29	Change of mineral abundance	29a	Destruction of pore space	
30	Biomass accumulation	30a	Destruction of pore space	
31	Change of aqueous species	31a	Destruction of pore space	
32	pH-level change	32a	Destruction of pore space	

#### Tabelle 32: Identifizierte Gefahren, die das Gesamtrisiko beeinflussen.

REMI	REMAINING THREATS AND HAZARDS INCREASING OVERALL RISK - FTA				
<u>NO.</u>	THREAT/HAZARD	<u>NO.</u>	INFLUENCING		
33	Generation of H <sub>2</sub> S	33a	Corrosion risk increasing		
		33b	Embrittlement risk increasing		
		33c	Blistering risk increasing		
		33d	Cement leak risk increasing		
		33e	Fatality risk increasing		
34	Static demixing	34a	Blistering risk increasing		
		34b	Embrittlement risk increasing		
		34c	Diffusion rate increasing		
		34d	Cement leak risk increasing		
		34e	Caprock leak risk increasing		
		34f	Viscous fingering increasing		
35	Dynamic demixing (pipes)	35a	Embrittlement risk increasing		
		35b	Diffusion rate increasing		
36	Dynamic demixing (reservoir)	36a	Diffusion rate increasing		
		36b	Blistering risk increasing		
		36c	Cement leak risk increasing		
		36d	Caprock leak risk increasing		
		36e	Viscous fingering increasing		
37	Overfilling	37a	Caprock leak increasing		
38	Too high injection rate	38a	Viscous fingering increasing		

## DEMAINING THREATS AND HAZARDS INCREASING OVERALL DISK. ETA

#### b) Zusammenfassung der Ergebnisse

Bei der Ausführung des Risiko Assessments wurde das Risiko eines obertägigen Gasaustritts, d.h. eines unbestimmten Mischungsverhältnisses von Methan und
Wasserstoff, als wichtigstes Kriterium (Hauptereignis) herangezogen, da es einen direkt Einfluss auf die Sicherheit des Personals an der Anlage haben kann.

### Obertage Betrachtung

In Bezug auf den Fall eines Obertägigen Gasaustritts, wurden die Risiken menschlicher Faktor (human interferrence) und Korrosion (corrosion) als die wahrscheinlichsten Ursachen identifiziert.

Im Falle einer menschlichen Beeinflussung wurde Sabotage, neben dem Fehlverhalten von Kontraktoren als höchste Gefahr identifiziert. Betreffend dem Risikofaktor Korrosion wurden speziell der Kompressor, Wellhead, sowie die Verrohrung der Anlage als zu betrachtende Risikoelemente bzw. Gefahrenelemente identifiziert.

Die Gefahr einer Materialversprödung durch Wasserstoff wurde hingegen als gering bewertet, da der niedrige Anteil an Wasserstoff in dem Gasgemisch, sowie die Temperatur und der vorherrschende Druck in der Anlage zu gering ist, um eine Materialversprödung zu verursachen.

Daher kommt man zu dem Schluss, dass, ob mit oder ohne Wasserstoffanteil im Gasgemisch, die Gefahren für die Obertageeinrichtungen der Anlage die Korrosion und der menschliche Faktor darstellen.

Das Ergebnis der Monte Carlo Analyse, bezogen auf das Hauptereignis, ergibt einen Mittelwert für einen signifikanten obertägigen Austritt des Gasgemisches mit "einmal in 7580 Jahren", und korrespondiert überwiegend mit den erhobenen Ergebnissen aus der Literaturstudie.

Nachfolgend wurden auch die weiterführenden Ereignisse nach einem Eintritt des Hauptereignisses nach Häufigkeit betrachtet und in einer FN-Kurve (Abbildung 104) dargestellt.



FN - CURVE - RAG P2G FACILITY

Abbildung 104: FN Kurve (schwarz=Durchschnitt; gestrichelt rot = 3Sigma) von der RAG PtG Anlage (Tucovic, N. 2017) Das Ergebnis lässt deutlich erkennen, dass die Power-to-Gas-Anlage die gängigen Grenzwerte unterschreitet und es zu keinen signifikanten Risiken für Mensch und Umwelt kommt. Anzumerken ist jedoch, dass es, bezogen auf den Literaturvergleich, zu einigen Diskrepanzen kommt, was wiederum auf die Unsicherheit bei der Festlegung alleine durch Expertenmeinungen schließen lässt.

Nachfolgend wurden ebenfalls die Hauptprobleme, welche aus einem übertägigen Gasaustritt resultieren, in einem Spider Diagramm (Abbildung 105) dargestellt. In dieser Darstellung wird offensichtlich, dass Personen und die Öffentlichkeit als die herausstechenden Merkmale identifiziert wurden. Die Umwelt hat in dieser Darstellung die niedrigste Reihung, da der Einfluss eines Obertägigen Gasaustrittes für die Umwelt keinen direkten Schaden verursacht.



#### Consequence Ratings of Surface Gas Loss Outcome Events

# Abbildung 105: Spider Diagramm von den Oberfläche OEs, bewertet nach den Konsequenzen (Tucovic, N. 2017)

### Untertage Betrachtung

Für die Untertage-Betrachtung des Risk Assessments wird darauf hingewiesen, dass ein möglicher Wasserstoffverlust bzw. eine Schädigung des geologischen Systems keinen direkten Einfluss auf die Sicherheit der Power-to-Gas Anlage haben. Die Risiken in dieser Hinsicht sind dadurch überwiegend finanzieller Natur.

Bei der Gefahrenbetrachtung der Untertageeinrichtung und des geologischen Systems, sticht wieder die Korrosion als größte Bedrohung, gefolgt von der Methanogenese und dem viscous flow durch die Zementation des Bohrloches, für das betrachtete Hauptereignis heraus.

Die Berücksichtigung der Ergebnisse aus der Monte Carlo Analyse für die zwei durchgeführten Bow-Tie Modellbetrachtungen, weisen eine Wahrscheinlichkeit von 5,98E-03 für eine signifikante Zerstörung des geologischen Systems und 6,07E-03 für den signifikanten Verlust des Heizwerts aus. Jedoch muss hier angemerkt werden, dass es bei allen betrachteten und berücksichtigten Studien eine sehr hohe Diskrepanz bezüglich der Wahrscheinlichkeit der Häufigkeit pro Jahr kommt. Diese Unsicherheit der Betrachtung ist zum einen auf die verschiedenen angewandten Methodologien bei der Herleitung der Frequenzverteilungen zurückzuführen, und zum anderen auf die verschiedenen betrachteten Szenarien. Daher ist die angewandte Frequenzverteilung ebenfalls mit einer hohen Unsicherheit behaftet und ist dadurch mit Vorsicht zu behandeln.

Die Bewertung möglicher Ereignisse der Untertage Risikobewertung ist in der nachfolgenden Darstellung (Abbildung 106) zusammengeführt. Das am höchsten gereihte Ereignis ist die komplette Zerstörung der Speicherfähigkeit. Der damit verbundene finanzielle Aspekt wird, gefolgt von den Auswirkungen auf die Reputation, durch die öffentliche Wahrnehmung als die Größte Gefahr identifiziert.



# Abbildung 106: Spider Diagramm von den Untertage OEs bewertet nach den Konsequenzen (Tucovic, N. 2017)

Abschließend kann festgehalten werden, dass ein Gasgemisch mit einem Anteil von bis zu 10% Wasserstoff das Risiko der betrachteten Power-to-Gas Anlage inklusive der geologischen Lagerstätte im Vergleich zu konventionellen Erdgaslagerstätten nicht erhöht. Alle mit einer Untertage Gaslagerstätte in Verbindung gebrachten Risiken unter der Berücksichtigung von Wasserstoff, wie z.B. Materialversprödung, Diffussion, viscous fingering, oder Entmischung, wurden einer eingehenden Betrachtung unterzogen und als nicht signifikant bewertet. Das einzig verbleibende Risiko durch eine Beimengung von Wasserstoff ist die nachgewiesene Steigerung mikrobiologischer Aktivität im geologischen System und stellt ein reines Finanzrisiko für das Unternehmen dar. Eine Beeinträchtigung der Sicherheit von Anlage oder Personen ist auszuschließen. Einzige Ausnahme wäre eine Sulfatreduktion durch spezielle Bakterien welche in weiterer Folge

zu einer Schwefelwasserstoffbildung im Reservoir führen könnte. Dies ist für den betrachteten Fall mit an Sicherheit grenzender Wahrscheinlichkeit auszuschließen, muss aber für weitere Anwendungsfälle geprüft werden.

Damit liegen keine ersichtlichen Einschränkungen vor, welche gegen eine Einspeicherung von bis zu 10% Wasserstoff in dem Betrachteten Untertage-Porenspeicher sprechen.

### Life-Cycle Assessment

Ausgehend von den Vorgaben aus den ISO-Standards resultieren in den einzelnen Phasen folgende, aufeinander aufbauende, Ergebnisse:

Phase 1: Die Systemgrenzen werden durch die eingesetzten Prozess-Einheiten des jeweiligen spezifischen Anwendungsfeldes bestimmt. Daraus ergibt sich die Definition der Analyse als Gate-to-Gate Assessment, d.h. die Phasen der Herstellung, Instandhaltung/Wartung und der Verwertung bzw. Entsorgung der Pilotanlage sowie für die Energieerzeugung sind nicht inkludiert. Der Fokus der Untersuchung liegt auf dem wertschöpfenden Prozess der generierten Produkte bzw. Dienstleistung. Die Funktionalitäten beziehen sich auf die Prozess-Module der Pilotanlage (siehe Abbildung 2 Fließbild). Die funktionelle Einheit bezieht sich auf die Outputs (die sind je nach Geschäftsmodell synthetisches Methan, Erdgas, oder Mixturen) der Wasserstoff. untersuchten Anwendungsfelder, weshalb der Energieinhalt per MJ herangezogen wurde, um Vergleiche anstellen zu können.

<u>Phase 2:</u> Die Sachbilanz beruht auf der Analyse aller Inputs und Outputs der Prozess-Module (je nach Anwendungsfeld). Daten wurden aus vorgelagerten Arbeitspaketen (Datenblätter, vordefinierte oder gemessene Daten), aus LCA-Datenbanken (GaBi und aus Ecoinvent konvertierte Daten), sowie durch die Anwendung konzeptioneller Designs bei unzureichender Datenlage (Annahmen und Abschätzungen basierend auf physikalischen und chemischen Grundsätzen) generiert.

<u>Phase 3:</u> Die Wirkungsabschätzung wurde mittels der CML-Methode umgesetzt. Die Berechnung erfolgte mit Hilfe der Software Umberto NXT Universal unter Anwendung der GaBi Datenbank. Um zukünftige Möglichkeiten miteinzubeziehen, berücksichtigt die LCA eine Wasserstoffkonzentration von 10 Vol.-% im Gasnetz (derzeitige Werte für Österreich und Deutschland liegen bei 4-5 Vol.-%. Die Wirkungsabschätzung beinhaltet Resultate für folgende Wirkungskategorien:

- Treibhauseffekt (Treibhauspotenzial, GWP)
- Ozonabbau (Stratosphäre) (Ozon Depletion Potential, ODP)
- Humantoxizität (Human Toxicological Classification Factor, HC)
- Aquatische Ökotoxizität (Ecological Classification Factor for Aquatic Ecosystems, ECA)

- Terrestrische Ökotoxizität (Ecological Classification Factor for Terrestrial Ecosystems, ECT)
- Bildung von Photooxidantien (Photochemical Ozone Creation Potential, POCP)
- Versauerung (Acidification Potential, AP)
- Eutrophierung (Nutrification Potential, NP)
- Erschöpfung abiotischer Ressourcen (Abiotic Depletion Factor, ADF)

Weiters wurde der Primärenergieverbrauch in die Wirkungsabschätzung miteinbezogen.

Die folgenden Abbildung 107 und Abbildung 108 zeigen das Fließbild und die entsprechenden Stoffflüsse (Inputs und Outputs) sowie deren Modellierung mittels LCA-Software und –Daten für das Anwendungsfeld 1b:



Abbildung 107: Fließbild Anwendungsfeld 1b (vgl. Sledz, 2017 und Tschiggerl et al. 2017)



Abbildung 108: Modellierung Anwendungsfeld 1b (Sledz, 2017)

Phase 4: Die Wirkungsabschätzung zeigte eindeutig, Energiequelle dass die ausschlaggebend für die ökologischen Auswirkungen der ausgewählten PtG-Anwendungsfelder ist. Dabei dominieren Prozesse im Hintergrund jene im Vordergrund. Innerhalb der beiden Anwendungsfelder wurde die Elektrolyseeinheit als wichtigster Energieverbraucher und deren spezifische Effizienz als kritischer Parameter identifiziert. Abbildung 109 gibt einen Auszug aus dem Umweltprofil für das Anwendungsfeld 1b.



Abbildung 109: Auszug Umweltprofil Anwendungsfeld 1b (vgl. Sledz, 2017 und Tschiggerl et al., 2017)

Risiken, welche mit der Wasserstoffspeicherung in Porenspeichern geologischer Formationen in Zusammenhang stehen könnten, sind die Integrität des Zements, Korrosion,

Entwicklung von Hydraten und mikrobiologischem Wachstum, welches die Bildung von Schwefelwasserstoff bewirken könnte. Nach Pichler (2013) und Schritter et al. (2016), sowie als Ergebnis aus den mikrobiologischen Untersuchungen, wäre der Untergrundspeicher nur dann durch mikrobiologische Aktivitäten beeinflusst, wenn Elektronenakzeptoren, wie CO<sub>2</sub> oder Sulfat vorhanden sind. Da die Ergebnisse im vorliegenden Feldtest und in vergleichbaren Einrichtungen insignifikant waren, wurden diese nicht in die LCA integriert. Generell ist zu berücksichtigen, dass die Umweltindikatoren nicht miteinander verglichen werden sollten, da sie unterschiedliche Umwelteinwirkungen betreffen. Als Konsequenz kann kein umweltfreundliches Produkt, Anwendungsfeld oder eine Energiequelle genannt werden, da die Argumentation sich auf die spezifische Situation bezieht. Life-Cycle Assessments basieren per se auf einem iterativen Vorgehen, im vorliegenden Fall wäre die Datensammlung über einen längeren Zeitraum sinnvoll, sowie die Einbindung der Analyse in breiterem Kontext, z.B. hinsichtlich Synergien zwischen PtG-Anlagen und Anlagen mit Bedarf an Sauerstoff und Abwärme. Dadurch sollten der PtG-Technologie möglich sein.

# 10.4 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

In Zusammenhang mit der Durchführung des Risiko Assessments wurden zwei Masterarbeiten verfasst. Es wird geplant einen Artikel, welcher auf die Anwendung der Monte Carlo Analyse und Sensitivtätsanalyse und auf die Bow-tie Modelle fokussiert, zu veröffentlichen.

In Zusammenhang mit der Durchführung des Life-Cycle Assessments wurde eine Masterarbeit veröffentlicht, ein Artikel wurde im Rahmen eines Konferenzvortrags Ende Juni 2017 präsentiert.

Nachfolgend sind die Veröffentlichungen, welche im Rahmen des Arbeitspakets erstellt wurden aufgelistet:

- Sledz, Christian (2017): Life-Cycle Assessments of Power-to-Gas Business Models. Master Thesis, Montanuniversität Leoben.
- Tschiggerl, Karin; Sledz, Christian; Topic, Milan (2017): Evaluation of Environmental Impacts of Power-to-Gas Business Models. Vortrag 3<sup>rd</sup> International Conference on Energy and Environment, Porto 29. – 30. Juni.

# 10.5 Literaturverzeichnis

#### Risiko Assessment (Literaturauszug)

<u>Bücher</u>

- DGMK (Ed.) (2013): DGMK Research Report 756: Influence of Bio-methane and Hydrogen on the Microbiology of Underground Gas Storage. Hamburg: DGMK. ISBN 978-3-941-72136-4.
- DGMK (Ed.) (2014): DGMK Research Report 752: Influence of Hydrogen on Underground Gas Storage. Hamburg: DGMK. ISBN 978-3-941-72148-7.

#### Papers und Artikel

- Amid, A.; Mignard, D.; Wilkinson, M. (2016): Seasonal storage of hydrogen in a depleted natural gas reservoir. In: International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 42, No. 12, pp. 5549-5558.
- Carden, P. O.; Paterson, L. (1979): Physical, chemical and energy aspects of underground hydrogen storage. In: International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 4, No. 6, pp. 559–569.
- Ferdous, R.; Khan, F.; Sadiq, R.; Amyotte, P.; Veitch, B. (2012): Handling and updating uncertain information in bow-tie analysis. In: Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 25, No. 1, pp. 8-19.
- Hagemann, B.; Rasoulzadeh, M.; Panfilov, M.; Ganzer, L.; Reitenbach, V. (2016): Hydrogenization of underground storage of natural gas: Impact of hydrogen on the hydrodynamic and bio-chemical behavior. In: Computational Geoscience, Vol. 20, No. 3, pp. 595-606.
- Panifilov, M. (2010): Underground Storage of Hydrogen: In Situ Self-Organisation and Methane Generation. In: Transport in Porous Media, Vol. 85, No. 3, pp. 841 – 865.
- Paterson, L. (1983): The implications of fingering in underground hydrogen storage. In: International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 8, No. 1, pp. 53–59.
- Sercombe, J.; Vidal, R.; Galle, C.; Adenot, F. (2007): Experimental study of gas diffusion in cement paste. In: Cement and Concrete Research, Vol. 37, No. 4, pp. 579–588.
- Sherif, S. A.; Barbir, F.; Veziroglu, T. N. (2003): Principles of Hydrogen Energy Production, Storage and Utilization. In: Journal of Scientific & Industrial Research, Vol. 62, No. 1, pp. 46-63.

#### Reporte, Publikationen, Diplomarbeiten und Dissertationen

- Altfeld, K. (2013): H<sub>2</sub> Sensitivity of Seals, Valve and Compressors in High Pressure Natural Gas Systems. Final Report for the GERG Project, Brussels.
- Altfeld, K.; Pinchbeck, D. (2013): Admissible Hydrogen Concentrations in Natural Gas Systems. Final Report for the GERG Project, Brussels.
- Batisse, R. (2012): Existing Natural Gas Transmission Pipelines Tolerance to CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> Mixtures. Final Report for the GERG Project, Brussels.
- DBI (Ed.) (2012): Abschlussbericht Erarbeitung von Basisinformationen zur Positionierung des Energieträgers Erdgas im zukünftigen Energiemix in Österreich. AP 2: Evaluierung der existierenden Infrastrukturen auf Grundlage der ermittelten Potenziale, Leipzig.
- DBI (Ed.) (2013): Admissible Hydrogen Concentrations Natural Gas Systems Gas distribution. Final Report for the GERG Project, Brussels.
- Deborah, K. (2008): Failure rates for underground gas storage: Significance for land use planning assessments. Research Report for HSE, HSE, Norwich.
- Foh, S.; Novil, M.; Rockar, E.; Randolph, P. (1979): Underground Hydrogen Storage Final Report. Technical Report for Department of Energy and Environment, Institute of Gas Technology, Chicago.
- Lord, A. S. (2009): Overview of Geologic Storage of Natural Gas with Emphasis on Assessing the Feasibility of Storing Hydrogen. Research Report, Sandia National laboratories, Albuquerque.
- Nadau, L. (2013): Underground Storage: literature survey of hydrogen and natural gas mixture behaviour. Final Report for the GERG Project, GERG, Brussels.

#### Life-Cycle Assessment (ausgewählte Literatur)

Europäische Kommission (Hrsg.). 2010. EUROPE 2020 A strategy for smart, sustainable and inclusive growth. Europäische Kommission, Brüssel (Mar).

Europäischer Rat (Hrsg.). 2011. EUCO 2/1/11 REV 1. Generalsekretariat des Rats. Brüssel (Feb.).

- Fthenakis, V.; Kim, H.C.; Alsema, E. 2008. "Emissions from Photovoltaic Life Cycle." Environmental Science & Technology 42, No. 6 (Mar), 2168-2174.
- Fthenakis, V.; Kim, H.C.; Frischknecht, R.; Raugei, M.; Sinha, P.; Stucki, M. 2011. "Life Cycle Inventories and Life-Cycle Assessments of Photovoltaic Systems." Forschungsbericht, International Energy Agency PVPS Task 12, New York (Oct).
- Ganzer, L.; Reitenbach, V.; Pudlo, D.; Panfilov, M.; Albrecht, D.; Gaupp, R. 2013. "The H2STORE Project Experimental and Numerical Simulation Approach to Investigate Processes in Underground Hydrogen Reservoir Storage". Society of Petroleum Engineers. doi:10.2118/164936-MS.
- Götz, M.; Lefebvre, J.; Mörs, F.; McDaniel Koch, A.; Graf, F.; Bajohr, S.; Reimert, R.; Kolb, T. 2016. "Renewable Power-to-Gas: A technological and economic review." Renewable Energy 8 (Jan), 1371-1390.
- Graf, F.; Götz, M.; Henel, M.; Schaaf, T.; Tichler, R. 2014. "Technoökonomische Studie von Power-to-Gas Konzepten." Forschungsbericht G3-01-12, DVGW, Bonn (Nov.).
- Hellweg, S.; Rubli, S.; Von Götz, N. 2016. "Ökologische Systemanalyse. Materialflussanalyse Risikoanalyse Ökobilanz." Vorlesungsskriptum, ETH Zürich, Zürich (Feb).
- International Energy Agency (Ed.). 2012. World Energy Outlook 2012. IEA. Paris.
- International Organization for Standardization (Ed.). 2006. ISO 14044:2006 Environmental management—lifecycle assessment—requirements and guidelines. ISO, Genf.
- Johnson M.W.; Suskewicz J. 2009. "How to jump-start the Clean Tech economy." *Harvard Business Review* 87, No.11 (Nov), 52-60.

Klöppfer, W.; Grahl, B. 2012. Ökobilanz (LCA): Ein Leitfaden für Ausbildung und Beruf. Wiley, Weinheim.

- Lehner, M.; Tichler, R.; Steinmüller, H.; Koppe, M. 2014. *Power-to-Gas: Technology and Business Models*. Springer, Cham-Heidelberg et al.
- Makaruk, A.; Szivacz, J.; Bauer, S.; Schlegl, L. 2016. "Key role of membrane gas separations in the utilisation of an underground natural gas reservoir for the renewable energy storage." In Proceedings of the Spring Conference (Paris, France, Apr.21-22). Gas Processors Association Europe, Paris, n.p.
- Müller-Syring, G.; Henel, H.; Köppel, W.; Mlaker, H.; Sterner, M; Höcher, T. 2013. "Entwicklung von modularen Konzepten zur Erzeugung, Speicherung und Einspeisung von Wasserstoff und Methan ins Erdgasnetz." Forschungsbericht G1-07-10, DVGW, Bonn (Feb).
- Pichler, M. 2013. "Assessment of hydrogen-rock interactions during geological storage of CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> mixtures." Masterarbeit, Montanuniversität Leoben.
- Reiter, G.; Lindorfer, J. 2015. "Global warming potential of hydrogen and methane production from renewable electricity via power-to-gas technology." *The International Journal of Life-Cycle Assessment 20*, No.4 (Apr), 477-489.
- Reiter, G.; Lindorfer, J.; Tichler, R. (2015). "Projekt Underground.Sun.Storage: vertiefte Konzeption der Geschäftsmodelle für die ökonomische Bewertung." Forschungsbericht, Energie Institut JKU, Linz (Mar).
- Schaltegger, S.; Hansen, E.; Lüdeke-Freund, F. (2016). "Business Models for Sustainability: Origins, Present Research, and Future Avenues." *Organization & Environment 29*, No.1 (Mar), 3-10.
- Schritter, J.; Scherr, K.; Komm, R.; Backes, D.; Loibner, A.P. 2015. "Underground.Sun.Storage WP 3 Microbial Processes in Hydrogen Exposed Reservoir: Hydrogen induced microbial processes as observed underground gas storage simulation experiments." Präsentation beim 3. Stakeholder Workshop Underground.Sun.Storage, Wien (Jun).
- Tichler, R.; Steinmüller, H.; Reiter, G. 2014. "Wirtschaftlichkeit und Systemanalyse von Power-to-Gas Konzepten." Forschungsbericht G3-01-12, DVGW, Bonn (Nov).
- United Nations (Ed.). 2015. Transforming our world: the 2030 Agenda for Sustainable Development. A/RES/70/1. UN, New York (Oct).
- United Nations Framework Convention on Climate Change (Ed.). 2015. ADOPTION OF THE PARIS AGREEMENT Proposal by the President –Draft decision -/CP.21. F FCCC/CP/2015/L.9/Rev.1. UN FCCC, Paris (Dec).
- Valente, A.; Irabarren, D.; Dufour, D. 2017. "Life-cycle assessment of hydrogen energy systems: a review of methodological choices." *The International Journal of Life-Cycle Assessment 22*, No.3 (Mar), 346-363.

# 10.6 Kontaktdaten

Projektleiter Hubert BIEDERMANN o.Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr. mont. Vorstand Lehrstuhl und Department WBW +43 (0) 3842 402 6000 hubert.biedermann@unileoben.ac.at wbw.unileoben.ac.at

Weiterere Ansprechpartner Franz SIEGMETH Dipl.-Ing. MBA, Senior Lecturer +43 (0) 3842 402 6014 franz.siegmeth@unileoben.ac.at

Robin KÜHNAST Dipl.-Ing., Wissenschaftlicher Mitarbeiter +43 (0) 3842 402 6030 robin.kuehnast@unileoben.ac.at

Karin TSCHIGGERL Mag., Wissenschaftliche Mitarbeiterin +43 (0) 3842 402 6005 karin.tschiggerl@unileoben.ac.at

# 11 Ökonomische und rechtliche Analysen

In diesem Kapitel werden im Rahmen der ökonomischen und rechtlichen Analysen die unterschiedlichen Nutzungsmöglichkeiten und Anwendungsfelder der Speichertechnologie im Kontext des gesamten Power-to-Gas Systems betrachtet. Zusätzlich wird das Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz ermittelt. Um einerseits Hemmnisse aufzuzeigen und andererseits mögliche künftige Rahmenbedingungen vorzuschlagen, erfolgt eine Analyse des bestehenden Rechtssystems und eine Untersuchung der gesellschaftlichen Akzeptanz von Power-to-Gas.

# 11.1 Aufgabenstellung

Die Aufgabenstellung im Projektteil "Ökonomische und rechtliche Analysen" umfasst folgende Punkte:

- 1. Analyse der momentanen rechtlichen Situation
- Aufbauend auf den grundlegenden technischen Ergebnissen, sollen Vorschläge für Rechtsvorschriften für die Änderung existierender Gesetze entworfen werden, mit dem Ziel, das System für die unterirdische Speicherung von Wasserstoff zu öffnen und eine Hilfestellung zur Integration in den Erdgasmarkt zu geben.
- 3. Detaillierte Analyse der optimalen Systemintegration von Wasserstoffspeicherung in den Energiemarkt
- 4. Detaillierte Definition und Analyse der ökonomischen Charakteristiken und Einflüsse von Wasserstoffproduktion und -speicherung
- 5. Identifikation der Potentiale für Kostenreduktion für das Energiesystem
- 6. Quantifizierung der makoökonomischen Einflüsse des Prozesses

## 11.2 Inhaltliche Darstellung

In diesem Kapitel wird eine detaillierte inhaltliche Darstellung der bearbeiteten Themenblöcke – Rechtliche Analysen, Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz, Ökonomische Bewertung, Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas – gegeben.

### 11.2.1 Rechtliche Analysen

Die rechtliche Analyse beschäftigt sich überwiegend mit der (Zwischen-) Speicherung von Wasserstoff und synthetischem Erdgas im Erdgasnetz. Dabei wird zunächst dargelegt, wie die Power-to-Gas-Anlage in das strom- und gasseitige Marktmodell eingeordnet werden kann und wer eine solche Anlage errichten und betreiben darf. Sodann werden die allgemeinen berufs- und betriebsanlagenrechtlichen Voraussetzungen aufgezeigt. Ein wichtiger Punkt in diesem Zusammenhang ist auch, die strom- und gasseitigen Kosten zu beleuchten. Da das GWG 2011 aktuell nur für Erdgas und biogene Gase anwendbar ist, stellt sich die Frage ob und unter welchen Voraussetzungen auch die Power-to-Gas-Produkte darunter gefasst werden können. Im Anschluss gilt es, die Möglichkeiten der Rückverstromung in einer externen Anlage sowie der Teilnahme der Power-to-Gas-Anlage am Regelenergiemarkt in Form der negativen Sekundärregelung zu untersuchen.

Eine weitere Rechtsfrage beschäftigt sich mit der Untertagespeicherung der Power-to-Gas-Produkte nach dem MinroG sowie der Erdgasspeicherung nach dem GWG 2011.

Abschließend wird überblicksartig ausgeführt, ob die Power-to-Gas-Anlage im Krisenfall dem staatlichen Zugriff nach dem EnLG 2012 unterfallen kann.

### 11.2.2 Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz

Ziel der vorliegenden Untersuchung ist es, eine Abschätzung des Potentials der Wasserstoffeinspeisung im österreichischen Erdgasnetz vorzunehmen, um daraus das Potential für Power-to-Gas Anlagen abzuleiten. Das Potential der Wasserstoffeinspeisung in das Erdgasnetz in Österreich ist von zahlreichen unterschiedlichen Faktoren abhängig. Die wichtigsten Faktoren sind hier angeführt:

- Erlaubter Volumenanteil von H<sub>2</sub> im Erdgas (geregelt in der Richtlinie ÖVGW-RL G31)
- Einhaltung der brenntechnischen Kennwerte Wobbe-Index, Brennwert und relative Dichte (ebenfalls geregelt in der Richtlinie ÖVGW-RL G31)
- Verträglichkeit der unterschiedlichen Komponenten und Materialien in der Erdgasinfrastruktur (Transport, Speicherung und Verteilung von Erdgas, Mess- und Regeltechnik sowie Anwendungen der Endverbraucher)
- Erdgasdurchfluss mit tages- und jahreszeitlichen Schwankungen (maximaler Volumenanteil H<sub>2</sub> sowie brenntechnische Kennwerte müssen zu jeder Zeit eingehalten werden!)
- Erzeugungsstruktur der Power-to-Gas Anlage bzw. der erneuerbaren Stromerzeuger (insbesondere Windkraftanlagen und Photovoltaik)
- Entfernung der Power-to-Gas Anlage bzw. der erneuerbaren Stromerzeuger vom Einspeisepunkt in das Erdgasnetz
- Standortspezifische Kenngrößen und Lastflüsse im Erdgasnetz (sehr große Schwankungen speziell in kleinen Ortsnetzen)

In den durchgeführten Abschätzungen des Potentials der H<sub>2</sub>-Einspeisung in das Erdgasnetz wurden die einzelnen Faktoren berücksichtigt. Die Daten stammen dabei u.a. aus unterschiedlichen Literaturquellen, von der E-Control Austria und verschiedenen Gasnetzbetreibern (Beispielnetze).

### 11.2.3 Ökonomische Bewertung

Die ökonomische Bewertung von Power-to-Gas erfolgt anhand der Berechnung spezifischer Gestehungskosten für Wasserstoff bzw. Methan in unterschiedlichen Anwendungsfeldern. Aufgrund der vielseitigen Einsatzmöglichkeiten von Power-to-Gas im Energiesystem, lassen sich zahlreiche Anwendungsfelder ableiten, wobei für folgende eine ökonomische Bewertung durchgeführt wurde:

- 1) Speicherung von erneuerbarer Energie in Gas-Porenspeichern (neues Produkt/neuer Markt)
  - a. Dienstleistung Bereitstellung einer Speichermöglichkeit für Wasserstoff im Porenspeicher
  - b. Erneuerbares Speicherprodukt aus dem Porenspeicher
- 2) Nutzung von nicht-öffentlichen Gasleitungen (Rohgasleitungen)
- 3) Substitution von Ersatzinvestitionen im Stromnetzausbau
- 4) Optimierung des Lastmanagements (bei hohem Anteil volatiler Produktion)
- 5) Optimierung des Betriebs einer Windkraftanlage
  - a. Erhöhung der Volllaststunden einer Windkraftanlage als Alternative zu Abschaltungen
  - b. Erlösoptimierung einer Windkraftanlage Erfüllung der Day-Ahead Prognosen mit Zwischenspeicherungen
- 6) Zwischenspeicherung von elektrischer Energie
  - a. Verkauf am Strommarkt zu preislich optimalen Zeiten
  - b. Eigene Nutzung im Fall flexibler Tarife Optimierung der Bezugskosten
- 7) Herstellung eines neuen erneuerbaren Produkts
  - a. für den Treibstoffmarkt
  - b. für die chemische Industrie
- 8) H<sub>2</sub>-Abtrennung aus dem Erdgas Herstellung eines erneuerbaren Produkts (Treibstoff/Chemie)
- 9) Bereitstellung negativer Regelenergie

Diese Anwendungsfelder werden den jeweils spezifischen Benchmarks im Energiesystem gegenübergestellt. Zur Optimierung der Gestehungskosten und somit der Wirtschaftlichkeit von Power-to-Gas werden zudem verschiedene Kombinationen von Anwendungsfeldern untersucht. Die Auswahl der dafür geeigneten Anwendungsfelder erfolgt anhand von den jeweiligen Gestehungskosten.

Die Analyse der volkswirtschaftlichen Auswirkungen der Power-to-Gas-Technologie für Österreich erfolgte für ausgewählte Anwendungen. Innerhalb der Analyse werden zum einen die komparativ-statischen Daten der Nutzung der jeweiligen Technologie angeführt, zum anderen wird basierend auf diesen Werten jeweils eine makroökonometrische Simulationsanalyse durchgeführt, anhand welcher dynamische Effekte auf die Volkswirtschaft quantifiziert werden können. Diese Effekte werden hinsichtlich ihrer Wirkung für die zentralen makroökonomischen Variablen Bruttoinlandsprodukt, Beschäftigte, Leistungsbilanz, privater Konsum und Investitionen ermittelt. Es erfolgte eine Auswahl an Szenarien für die die volkswirtschaftlichen Effekte analysiert wurden. Die Auswahl erfolgte hinsichtlich ihrer plausiblen Umsetzung, einer möglichst breiten Unterscheidung zwischen den Szenarien und deren Datenverfügbarkeit. Für folgende Anwendungsfelder wurden die volkswirtschaftlichen Effekte simuliert:

- Anwendungsfeld 5a (Optimierung des Betriebs einer Windkraftanlage)
- Anwendungsfeld 7a (Herstellung eines erneuerbaren Produkts in der Form von Treibstoff (Wasserstoff oder Methan))
- Anwendungsfeld 7b (Herstellung eines neuen Produkts (Wasserstoff) für den Einsatz in der Industrie)

Des Weiteren erfolgte eine Analyse der volkswirtschaftlichen Effekte für die Kombination aus den verschiedenen Anwendungsfeldern.

## 11.2.4 Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas

Ziel ist es, den Status Quo hinsichtlich der gesellschaftlichen Akzeptanz der Power-to-Gas Technologie in einer Recherche bereits existierender Studien, Meinungsumfragen, Projekte zu erarbeiten. Wenngleich nicht im speziellen die Akzeptanz von Power-to-Gas Anlagen und der Einspeisung von Wasserstoff ins Erdgasnetz untersucht wurde, so existieren bereits Studien zur Akzeptanz von Wasserstoff vor allem im Mobilitätsbereich, deren Ergebnisse zumindest partiell auf das Power-to-Gas Verfahren umgelegt und diskutiert werden können. Die Ergebnisse werden dabei in einem österreichspezifischen Kontext dargestellt. Parallel dazu findet ein Überblick der Sekundärliteratur zur gesellschaftlichen Akzeptanz von Energieinfrastrukturvorhaben, im Speziellen von Hochspannungsleitungen sowie Pumpspeicherkraftwerken statt, um die bereits gewonnen Erfahrungen mit der Problematik und im Umgang mit Akzeptanzproblemen zu diskutieren und auf Power-to-Gas umzulegen.

# 11.3 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse und Schlussfolgerungen der bearbeiteten Themenblöcke – Rechtliche Analysen, Markenrecherche, Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz, Ökonomischen Bewertung, Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas – beschrieben.

## 11.3.1 Rechtliche Analysen

Aufgrund der stetig zunehmenden Nutzung von elektrischer Energie aus erneuerbaren Quellen stellt sich die Frage, wie zeitweise überschüssige Elektrizität genutzt werden kann, damit die entsprechenden Erzeugungsanlagen nicht gedrosselt oder ganz abgeregelt werden müssen bzw. signifikante Leitungskapazitäten errichtet werden müssen. Die Suche nach geeigneten Speichertechnologien hat insbesondere zu der Überlegung geführt, mit der Elektrizität Wasserstoff bzw. optional daraus synthetisches Erdgas herzustellen (Power-to-Gas). Damit kann insbesondere der volatile Erzeugungsanteil an elektrischer Energie in ein Speichermedium überführt und einer bedarfsorientierten Nutzung zugeführt werden. So ist es beispielsweise möglich, diese Energieträger zunächst ins Erdgasnetz einzuspeisen. Bei Bedarf, also z.B. zu Zeiten geringer Stromerzeugung, können die im Erdgasnetz gespeicherten Power-to-Gas-Erzeugnisse wieder bilanziell aus dem Erdgasnetz entnommen und rückverstromt werden, um diesen Strom wieder in das Elektrizitätsnetz einspeisen zu können. Allerdings ist diese Vorgehensweise nicht die präferierte Verwendungsoption. Ebenso darstellbar ist u.a. auch der Einsatz im Verkehrssektor, im Wärmebereich und in der Industrie als Prozessenergie.

Die Untersuchung der rechtlichen Rahmenbedingungen in Underground Sun Storage ergibt jedoch, dass der aktuelle Rechtsrahmen in Österreich betreffend Speicher- bzw. Umwandlungsanlagen im Allgemeinen und betreffend Power-to-Gas-Anlagen im Besonderen noch sehr rudimentär ausgestaltet ist, wobei allerdings erste Schritte in diese Richtung unternommen wurden, dies zu ändern. Dennoch bestehen noch zahlreiche ungeklärte Rechtsfragen und damit verbundene Unsicherheiten. Aus diesem Grund wurde einerseits von mehreren Steakholdern ein erstes Positionspapier erstellt, in dem ausgewählte rechtliche Problemstellungen samt Änderungsvorschlägen zusammengetragen wurden. Andererseits werden aus diesem Grund im Rahmen der Untersuchung oftmals bereits bestehende Regelungen bezüglich Pumpspeicherkraftwerke als Basis dargelegt. Zudem wird auch immer wieder ein kurzer Exkurs in die deutsche Rechtslage unternommen, sofern dies für die österreichische Betrachtung sinnvoll erscheint. Dabei wird deutlich, dass Power-to-Gas-Anlagen in Deutschland in vielen Segmenten rechtlich bessergestellt sind, als äquivalente Anlagen in Österreich.

Die rechtliche Untersuchung im Kontext der Power-to-Gas-Technologie beschäftigt sich im Rahmen dieses Projekts überwiegend mit der Möglichkeit der (Zwischen-)Speicherung von Wasserstoff und synthetischem Erdgas im Erdgasnetz. Dabei wird zunächst analysiert, um welche Marktteilnehmer es sich bei der Power-to-Gas-Anlage sowohl strom- als auch gasseitig handeln könnte. Aktuell fehlt es jedoch an einer konkreten Einordnung in das österreichische Marktmodell. Somit muss auf die bestehenden allgemeinen energierechtlichen Regelungen zurückgegriffen werden. Da die Power-to-Gas-Anlage als ersten Schritt elektrische Energie wohl überwiegend aus dem öffentlichen Netz bezieht, ist diese Technologie - auch in Anlehnung an die höchstrichterliche Judikatur zu Pumpspeicherkraftwerken – elektrizitätsrechtlich als Entnehmer, Kunde, Netzbenutzer sowie als Endverbraucher einzuordnen. Sofern man an dieser Stelle die Anwendbarkeit des GWG 2011 voraussetzt, muss im Falle des reinen Wasserstoffs beachtet werden, dass dieser, anders als synthetisches Erdgas, nicht direkt ins Erdgasnetz eingespeist werden darf, um z.B. Schäden an Rohrleitungen und Kundenanlagen zu vermeiden. Der Wasserstoff muss somit zuvor mit Erdgas aus dem Erdgasnetz zu einem Erdgas-Wasserstoff-Gemisch vermischt werden. Zwingend erforderlich ist, dass das einzuspeisende Gas die Vorgaben der einschlägigen ÖVGW-Richtlinien erfüllt und somit netzkompatibel ist. Auf der Gasseite fungiert die Power-to-Gas-Anlage – sofern sie tatsächlich Erdgas zum Zwecke der Beimischung für den reinen Wasserstoff aus dem Erdgasnetz entnimmt – als Entnehmer, Netzbenutzer und derzeit wohl auch als Endverbraucher und sodann als Einspeiser, aufgrund Erdgasunternehmen, Produzent, Netzbenutzer und des

Gesetzeswortlauts wohl auch als Erdgashändler, wenn das Erdgas-Wasserstoff-Gemisch oder das synthetische Erdgas in Gewinnabsicht ins Erdgasnetz abgegeben werden.

Sodann wird untersucht, wer eine solche Anlage überhaupt errichten und betreiben darf. Dies wird wohl grds. jedermann sein. Problematisch erscheint dies aus entflechtungsrechtlichen Gesichtspunkten allerdings bei den Netzbetreibern. So wird ein Gasverteilernetzbetreiber eine solche Technologie wohl derzeit nicht betreiben dürfen. Das gleiche gilt sowohl für den Stromnetzübertragungsnetzbetreiber als auch für den Gastransportnetzbetreiber. Anders könnte dies wiederum für den Stromverteilernetzbetreiber aussehen, sofern keine Rückverstromung in der Power-to-Gas-Anlage selber erfolgt.

Im Zusammenhang mit den berufs- und anlagenrechtlichen Voraussetzungen ist von einem freien, aber anmeldepflichtigen Gewerbe i.S.d. GewO 1994 auszugehen. Je nach vorhandener Mindestmenge könnte es sich aufgrund der Verwendung gefährlicher Stoffe zudem um eine Seveso III-Anlage handeln.

Wichtig war auch, die stromseitigen Kosten für die Power-to-Gas-Anlage zu beleuchten. Beim Bezug der Elektrizität aus dem öffentlichen Netz fallen zunächst die für Entnehmer relevanten Systemnutzungsentgelte an. Ausgenommen davon sind allerdings aufgrund einer temporären Befreiung nach § 111 Abs. 3 EIWOG 2010 das Netznutzungs- und das Netzverlustentgelt. Aus diesem Grund erscheint die Pflicht zur Entrichtung der Ökostrompauschale und des Ökostromförderbeitrags derzeit unklar. So wird nämlich die Ökostrompauschale "gemeinsam mit dem jeweiligen Netznutzungsentgelt" eingehoben und der Ökostromförderbeitrag ist "im Verhältnis zu den jeweilig zu entrichtenden Netznutzungsund Netzverlustentgelten" zu leisten. Das gleiche gilt für die KWK-Pauschale. In diesem Zusammenhang ist hervorzuheben, dass Pumpspeicherkraftwerke weder die Ökostromumlage noch die KWK-Pauschale zu entrichten haben. Hinsichtlich der Elektrizitätsabgabe ist zunächst von einem steuerpflichtigen Tatbestand auszugehen. Allerdings könnte möglicherweise eine Steuerbefreiung in Betracht kommen. Zum einen, wenn die elektrische Energie zur Erzeugung und Fortleitung von Erdgas verwendet wird; zwar stellt die Power-to-Gas-Anlage kein natürliches Erdgas her, dennoch produziert sie ein Erdgassubstitut in Form eines Erdgas-Wasserstoff-Gemischs bzw. von synthetischem Erdgas zum Zwecke der Einspeisung ins Erdgasnetz. Daher erscheint eine rechtliche Gleichstellung mit Erdgas naheliegend. Das gleiche gilt nach der Ansicht des Bundesministeriums für Finanzen auch für Biogas. Zum anderen, wenn die elektrische Energie für nichtenergetische Zwecke verwendet wird. Problematisch ist, dass die Umwandlung von Elektrizität in Wasserstoff bzw. synthetisches Erdgas nun auch einen energetischen Zweck darstellen kann. Allerdings liegt nach den Ausführungen des Bundesministeriums für Finanzen ein nichtenergetischer Zweck auch bei der Verwendung der elektrischen Energie zur Zersetzung oder Umsetzung von Stoffen wie bei der Elektrolyse vor. Das gleiche gilt generell für eine chemische oder physikalische Verwendung. Der erste Schritt des Power-to-Gas-Verfahrens ist gerade die Elektrolyse zum Zwecke der Herstellung von Wasserstoff. Optional kann darüber hinaus aus diesem Wasserstoff - und damit auf der Elektrolyse basierend – synthetisches Erdgas produziert werden. Die Methanisierung kann daneben noch als chemische Verwendung definiert werden. Der reine Energiepreis, sowie die Gebrauchsabgabe und die Umsatzsteuer werden hingegen schlagend.

Aktuell ist im GWG 2011 nicht explizit geregelt, ob und unter welchen Voraussetzungen die Power-to-Gas-Produkte in das Erdgasnetz eingespeist werden dürfen, ob also das GWG 2011 überhaupt anwendbar ist. Dieses gilt nämlich ausschließlich für (Erd-)Gas und biogene Gase. Allerdings kann durchaus argumentiert werden, netzkompatible Erdgas-Wasserstoff-Gemische sowie synthetisches Erdgas unter den Anwendungsbereich des GWG 2011 zu subsumieren, zumal auch Biogas erst auf Erdgasqualität aufbereitet werden muss. Gestützt wird diese Annahme durch die ErdgasRL 2009. Unter der Voraussetzung der Anwendbarkeit des GWG 2011 sowie der Einhaltung der Qualitätsanforderungen fallen gasseitig folgende Kosten an: Beim Bezug von Erdgas aus dem Erdgasnetz zum Zwecke der Vermischung mit dem Wasserstoff ist aktuell vorwiegend das Systemnutzungsentgelt für Entnehmer zu zahlen, genauso wie die Erdgaslieferung und die Umsatzsteuer. Bezüglich der Erdgasabgabe könnte hingegen die Möglichkeit einer Steuerbefreiung naheliegen.

Bei der (Rück-)Einspeisung des Erdgas-Wasserstoff-Gemischs bzw. des synthetischen Erdgases ist das Systemnutzungsentgelt für Einspeiser zu zahlen. Aufgrund systemischer Hintergründe sollte u.a. bezüglich des einzuspeisenden Wasserstoffanteils bzw. des synthetischen Erdgases eine rechtliche Gleichstellung mit biogenen Gasen angestrebt werden.

Im Falle der Rückverstromung durch eine externe Anlage stellt sich u.a. die Frage hinsichtlich der Ausweisung der Herkunft der elektrischen Energie. Daher empfiehlt sich eine Klarstellung, dass die Elektrizität, trotz Zwischenspeicherung im Erdgasnetz, dann aus erneuerbaren Energieträgern besteht, sofern die entsprechenden Voraussetzungen (z.B. Elektrizitätsentnahme aus einer Direktleitung) im jeweiligen Einzelfall erfüllt sind. Zudem bedarf es einer Festlegung, in welcher Höhe die Nachweise aufgrund technischer Speicherverluste zu löschen sind. Auch eine Regelung hinsichtlich einer eventuellen Einspeisevergütung wäre aufschlussreich.

Ferner wurde im Projekt Underground Sun Storage die Möglichkeit der Teilnahme einer Power-to-Gas-Anlage am Regelenergiemarkt in Form der negativen Sekundärregelung dargestellt. Dabei wurde auf die erforderlichen Voraussetzungen sowie allenfalls anfallende Kosten eingegangen.

Eine weitere Rechtsfrage ist mit der Möglichkeit der Untertagespeicherung der Power-to-Gas-Produkte nach dem MinroG verbunden. Das MinroG regelt vorwiegend die Speicherung von mineralischen Rohstoffen, also von Kohlenwasserstoffen natürlicher Herkunft, worunter Erdöl und Erdgas zu subsumieren sind. Allerdings ist auch das Einbringen von Stoffen verankert. Es werden somit die einzelnen Speichervorhaben dargestellt und versucht, die Reichweite der Begriffe Kohlenwasserstoffe und Stoffe zu umreißen. In diesem Zusammenhang unterfallen das einzubringende reine Erdgas sowie das synthetische Erdgas dem Begriff des Kohlenwasserstoffs. Der reine Wasserstoff gilt hingegen als Stoff. Abschließend wird überblicksartig ausgeführt, ob im Krisenfall auf die Power-to-Gas-Produkte zugegriffen werden darf. In diesem Zusammenhang erscheint es vorstellbar, dass die Power-to-Gas-Anlage stromseitig vorübergehend von der Lenkungsmaßnahme zur Sicherung der Elektrizitätsversorgung betroffen ist, weniger Strom zu beziehen. Gasseitig könnte hingegen die Anweisung erfolgen, mehr Erdgas-Wasserstoff-Gemische bzw. synthetisches Erdgas zu produzieren und ins Erdgasnetz einzuspeisen, um eine sichere Versorgung zu gewährleisten. Da die Power-to-Gas-Anlage jedoch im Falle der notwendigen Anreicherung von Wasserstoff mit Erdgas aus dem Erdgasnetz aufgrund dessen notwendigen Bezugs jedoch auch als Endverbraucher einzustufen ist, könnte auch die Lenkungsmaßnahme einschlägig sein, zeitweise weniger Erdgas zu entnehmen.

### 11.3.2 Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz

Wie die umfassende Untersuchung zeigt hängt das Potential der Wasserstoffeinspeisung in das österreichische Erdgasnetz von mehreren Einflussfaktoren ab. Wesentliche Bedeutung kommt hierbei Normen und Richtlinien wie der ÖVGW-RL 31 zu, welche den maximalen Volumenanteil von H<sub>2</sub> im Erdgas sowie die Einhaltung brenntechnischer Kennwerte (Wobbe-Index, Brennwert, relative Dichte) regeln. Weitere begrenzende Faktoren der H<sub>2</sub>-Einspeisung sind die Verträglichkeit der Komponenten und Materialien in der Erdgasinfrastruktur sowie die tages- und jahreszeitlichen Schwankungen des Erdgasdurchflusses. Bei Transportleitungen bestimmen zudem in vielen Fällen weniger die physikalischen Eigenschaften als Gaslieferverträge, ob über die Leitung Erdgas fließt, was sich erheblich auf das H<sub>2</sub>-Potential im jeweiligen Netzabschnitt auswirken kann.

Die Einspeisung von Wasserstoff ist je nach Netzebene, örtlichen Gegebenheiten und Abnehmerstruktur gesondert zu betrachten. Bei Transitleitungen ist zu beachten, dass die Gasqualität je nach Herkunft des Erdgases unterschiedlich und bereits Wasserstoff enthalten sein kann. Hierbei ist zu klären, ob eine zusätzliche H<sub>2</sub>-Einspeisung und eine Weiterleitung in das jeweilige Nachbarland möglich sind. Durch Verträge und häufiger wechselnder Ein- und Ausspeichervorgänge sind die Durchflüsse und deren Richtung in den Transportleitung nur schwer vorherzusehen. Im Verteilnetz hingegen folgt der Durchfluss und die Richtung des Erdgases physikalischen Bedingungen, wobei der Absatz, abhängig von der jeweiligen Verbraucherstruktur, teilweise starken Schwankungen unterliegt.

Der maximale H<sub>2</sub>-Anteil in Österreich liegt gemäß ÖVGW-RL 31 aktuell bei 4 Vol.-% (und 2 Vol.-% bei Erdgastankstellen). Hierbei liegt die Problematik jedoch darin, dass die Gasqualität im bestehenden Erdgasnetz vor allem an Übergabepunkten zu anderen Netzgebieten, Ländern sowie zu Erdgasspeichern gemessen wird. Brenntechnische Größen hängen im Wesentlichen von der Herkunft des Erdgases (Russland, Nordsee) ab. Anders als die relative Dichte bereitet dabei der Wobbe-Index die geringsten Schwierigkeiten. So wird der Grenzwert für die relative Dichte für Erdgas aus Russland bereits bei einem Volumenanteil von 4-5 Vol.-% H<sub>2</sub> unterschritten. Der Wobbe-Index kann auch bei einem Volumenanteil von 15 Vol.-% noch eingehalten werden, jedoch ist die Einhaltung der Grenzwerte für den Brennwert ab 10 Vol.-% H<sub>2</sub> als kritisch zu sehen.

Hinsichtlich der H<sub>2</sub>-Verträglichkeit einzelner Komponenten besteht vor allem bei Gasturbinen sowie Transport- und Speicherverdichtern Anpassungsbedarf. Weiterer Anpassungsbedarf besteht zudem auch bei CNG-Fahrzeugen (aktuell max. 2 Vol.-% H<sub>2</sub>) und

Prozessgaschromatographen (aktuell kein H<sub>2</sub> messbar). Bezüglich der Verträglichkeit von H<sub>2</sub> in Porenspeichern ist hingegen von erheblichem Forschungsbedarf auszugehen.

Die Abschätzung des Potentials von Wasserstoff im österreichischen Erdgasnetz erfolgt anhand eines theoretischen Potentials (Jahresgasverbrauch), durch Berücksichtigung des unterschiedlichen Jahresgasverbrauchs der Industrie und der Haushalte, sowie in Anlehnung an die Berechnung der Gasaufnahmekapazität im Sommerlastfall durch Hofmann et al. (2005). Die Ergebnisse für aktuelle sowie zukünftig mögliche Rahmenbedingungen und Grenzwerte sind in Abbildung 110 zusammengefasst. Zusätzlich sind in der Abbildung jene Komponenten im Erdgasnetz aufgeführt, bei denen noch Forschungs- oder zumindest Anpassungsbedarf besteht. Die Größe der Rechtecke gibt Auskunft über die Höhe des Potentials in Relation zu den jeweils anderen Berechnungsmethoden.



#### Abbildung 110: Potential der jährlichen H<sub>2</sub>-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz.

#### Quelle: Energieinstitut an der JKU Linz

Abbildung 110 zeigt das Potential der H<sub>2</sub>-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz für verschiedene Berechnungsmethoden. Die Berechnung der maximalen Menge an H<sub>2</sub> im Erdgasnetz berücksichtigt dabei nicht die großen Unterschiede des Erdgasdurchflusses im Jahresverlauf und stellt das theoretische Potential dar. Wird davon ausgegangen, dass nicht das ganze Jahr durchgehend Wasserstoff produziert wird (4300 Volllaststunden pro Jahr), so reduziert sich das Potential deutlich. Eine Auslegung der Einspeisung auf den Sommerlastfall (8h-Mittelwert) reduziert das Gesamtpotential nochmals, jedoch kann in diesem Fall unabhängig vom tatsächlichen Gasdurchfluss ganzjährig eingespeist werden. Über ein ganzes Jahr gesehen liegt das Potential bei Auslegung auf den Sommerlastfall also nur geringfügig unter jenem bei 4300 Volllaststunden pro Jahr. In Abbildung 110 wird die

einspeisbare Menge auch in % des Jahresgasverbrauchs angegeben. Hier ist anzumerken, dass die volumetrische Energiedichte von Wasserstoff geringer ist als jene von Methan (ca. 1/3 des Brennwerts von Methan). Bei einem Volumenanteil von 4 Vol.-% Wasserstoff werden somit in Hinblick auf den Energieinhalt nur 1,3% des Jahresgasverbrauchs ersetzt.

In der Analyse unterschiedlicher Beispielnetze konnte gezeigt werden, dass es allerdings besonders in Netzabschnitten mit vorwiegend Industriekunden keine typischen Verbrauchsprofile gibt. Auch die Verläufe der Regionen und Stadtgebiete weisen Unterschiede auf und so wurde für den Durchsatz im Sommerlastfall (8h-Mittelwert) eine Bandbreite zwischen 0 und 56% des mittleren Durchflusses ermittelt. Ein detailliertes Potential zur Wasserstoffeinspeisung kann aufgrund der unterschiedlichen Beschaffenheit nur für jeden Netzbereich gesondert erhoben werden. Die auf Österreich hochskalierten Ergebnisse können allerdings als Richtwerte dienen.

Auf Basis der möglichen H<sub>2</sub>-Aufnahmekapazität des österreichischen Erdgasnetzes (siehe Abbildung 110) erfolgt die Abschätzung der möglichen installierten Gesamtleistung von Power-to-Gas Anlagen und des speicherbaren Stroms in Form von H<sub>2</sub> (siehe Abbildung 111). Wird die Power-to-Gas Anlage auf Basis der mittleren Aufnahmekapazität des Erdgasnetzes ausgelegt, so ergibt sich eine mögliche Gesamtleistung von 176 MW<sub>el</sub> unter aktuellen Rahmenbedingungen. Bei Auslegung auf den Sommerlastfall ist die mögliche Gesamtleistung bereits deutlich reduziert. Dennoch ist unter aktuellen Rahmenbedingungen (4 Vol.-% H<sub>2</sub> im Erdgas) noch immer mindestens 1% des aus Wind und PV erzeugten Stroms in Form von H<sub>2</sub> speicherbar. Nach welchen Kriterien die Power-to-Gas Anlage dann tatsächlich ausgelegt wird, hängt vor allem stark vom jeweiligen Anwendungsfeld und dem betrachteten Netzgebiet ab. Im Falle einer Auslegung auf 4300 Volllaststunden pro Jahr ergeben sich hinsichtlich des Gesamtpotentials große Unterschiede in Leistung und speicherbarer Strommenge, da die Anlage nur in 4300 h/a H<sub>2</sub> produziert. Je nach Anwendungsfall kann aber neben der Gesamtmenge an speicherbarem Strom die mögliche Gesamtleistung wesentlich sein. Dies gilt vor allem für die Nutzung von Überschüssen aus Wind und PV, bei denen Lastspitzen eher kurzfristig und nicht ganzjährig anfallen.

Bei Speicherung von Überschüssen aus volatiler Stromerzeugung durch Windkraftanlagen oder Photovoltaik ist zudem die Charakteristik der Stromerzeugung und des Gasverbrauchs in den unterschiedlichen Regionen zu beachten. Während beispielsweise im Burgenland und in Niederösterreich eine hohe Stromerzeugung aus Windkraft, jedoch nur eine geringe Einspeisekapazität in das Erdgasnetz möglich ist, weisen andere Bundesländer hohe Einspeisekapazitäten (z.B. OÖ und Wien) aber nur geringe Stromproduktion aus Wind und PV auf.





Abbildung 111: Mögliche installierte Gesamtleistung von Power-to-Gas Anlagen und speicherbarer Strom für die unterschiedlichen H<sub>2</sub>-Einspeiskapazitäten in das österreichische Erdgasnetz für aktuelle und zukünftige Rahmenbedingungen.

Quelle: Energieinstitut an der JKU Linz

### 11.3.3 Ökonomischen Bewertung

Für die ökonomische Bewertung von Power-to-Gas im Rahmen des Projektes Underground Sun Storage wurden im Projektkonsortium neun Anwendungsfelder ausgewählt und acht davon quantitativ bewertet. Die Anwendungsfelder unterscheiden sich dabei in der Größenordnung, dem Systemnutzen, dem Produkt (Wasserstoff, Methan oder Strom) und dem jeweiligen Benchmark im Energiesystem.

Die Ergebnisse zu den einzelnen Anwendungsfeldern sind in Abbildung 112 gegenübergestellt. Neben den spezifischen Gestehungskosten für das jeweilige Produkt (Wasserstoff, Methan oder Strom) sind auch die jeweils erzielten Volllaststunden für die Power-to-Gas Anlage dargestellt, da diese die Kosten maßgeblich beeinflussen.



#### Abbildung 112: Überblick zu den Gestehungskosten der einzelnen Anwendungsfelder

#### Quelle: Energieinstitut an der JKU Linz

Anmerkung: alle Werte ohne USt. Die Werte beziehen sich in allen Anwendungsfeldern auf den Heizwert (LHV) von Wasserstoff und Methan mit Ausnahme der roten Säulen, welche sich auf den elektrischen Strom aus Wasserstoff oder Methan beziehen.

1a) Speicherung von erneuerbarer Energie in Gas-Porenspeichern – Bereitstellung Speichermöglichkeit als Dienstleistung
1b) Speicherung von erneuerbarer Energie in Gas-Porenspeichern – Erneuerbares Speicherprodukt aus dem Porenspeicher

2) Auslastung und Nutzung von nicht-öffentlichen Gasleitungen – qualitative Bewertung

3) Substitution von Ersatzinvestitionen im Stromnetzausbau

4) Optimierung des Lastmanagements bei hohem Anteil volatiler Produktion

5a) Optimierung des Betriebs einer Windkraftanlage durch Erhöhung der Volllaststunden als Alternative zu Abschaltungen 5b)Optimierung des Betriebs einer Windkraftanlage durch Erfüllung der Day-Ahead Prognose mit Zwischenspeicherung

6a) Zwischenspeicherung elektrischer Energie – Verkauf am Strommarkt zu preislich optimalen Zeiten

6b) Zwischenspeicherung von elektrischer Energie – Eigene Nutzung im Fall flexibler Tarife

7a) Herstellung eines neuen erneuerbaren Produkts – Treibstoffmarkt (Wasserstoff und Methan)

7b) Herstellung eines neuen erneuerbaren Produkts - chemisches Produkt (Wasserstoff)

8) H<sub>2</sub>-Abtrennung aus dem Erdgas

9a) Bereitstellung negativer Regelenergie - kostenoptimierte Volllaststunden

9b) Bereitstellung negativer Regelenergie - 3000 h/a

Aus der ökonomischen Bewertung geht hervor, dass einzelne Anwendungsfelder für sich alleine betrachtet meist mit hohen Gestehungskosten verbunden sind und diese stark von den erreichten jährlichen Volllaststunden der Power-to-Gas Anlage abhängen. Aufgrund der zusätzlichen Komponenten und des geringeren Gesamtwirkungsgrades sind die spezifischen Gestehungskosten von synthetischem Methan höher als jene von Wasserstoff. Durch die Rückverstromung wird der Wirkungsgrad über die gesamte Produktionskette deutlich verringert und die spezifischen Kosten steigen. Bei geringeren Volllaststunden haben die Investitionskosten großen Einfluss auf die Strombezugskosten. Zukünftig ist dabei von einer deutlichen Investitionskostenreduktion auszugehen.

Im Vergleich mit den Benchmarks im Energiesystem sind vor allem die Produktion eines erneuerbaren Produkts (Anwendungsfeld 7) und die Bereitstellung von negativer Regelenergie (Anwendungsfeld 9) interessant. Dies ist hauptsächlich auf die hohen Volllaststunden dieser beiden Anwendungsfelder zurückzuführen. Bei anderen Anwendungsfeldern werden hingegen nur sehr wenige Volllaststunden erreicht und trotz sehr geringer Strombezugskosten, wie im Falle der Nutzung von Überschüssen aus Windkraftanlagen (Anwendungsfeld 5) liegen die spezifischen Gestehungskosten sehr hoch. In Kombination mit anderen Anwendungsfeldern könnten diese aufgrund der geringen Strombezugskosten sehr interessant sein.

Zur Optimierung der Wirtschaftlichkeit durch Erhöhung der Volllaststunden wurde zusätzlich zu den einzelnen Anwendungsfeldern eine Kombination aus mehreren Anwendungsfeldern berechnet. Die Kombination beinhaltet die Nutzung von Überschussstrom aus Windkraftanlagen (250 h/a), die Bereitstellung negativer Regelenergie (3300 h/a) und einen zusätzlichen Strombezug aus dem öffentlichen Stromnetz zu Spotmarktpreisen (inkl. Herkunftsnachweis für erneuerbaren Strom). Der erzeugte Wasserstoff bzw. optional das synthetische Methan werden als Treibstoff genutzt oder in das Erdgasnetz eingespeist. Die Volllaststunden wurden mit 6000 h/a festgelegt. Die Berechnungen erfolgten für zukünftige (2025) Kosten und Rahmenbedingungen und sind in Abbildung 112 dargestellt.

Die Kombination der Anwendungsfelder trägt zur Erhöhung der Volllaststunden bei und bringt dadurch erhebliche Vorteile hinsichtlich Wirtschaftlichkeit. So können zukünftig spezifische Gestehungskosten von rund 13 Cent je kWh Wasserstoff bzw. 18 Cent je kWh synthetisches Methan erreicht werden.



# Abbildung 113: Zusammensetzung der spezifischen Gestehungskosten von Wasserstoff und Methan aus einer Power-to-Gas Anlage mit einer Nennleistung von 5 MWel bei 6000 h/a.

### Quelle: Energieinstitut an der JKU Linz

Anmerkung: alle Werte ohne USt. Die Werte beziehen sich auf den Heizwert (LHV) von Wasserstoff und Methan. Inkludiert sind zudem die Kosten für die erforderliche Tankstelleninfrastruktur und die Endverbraucherabgaben.

In einer Sensitivitätsanalyse wurde für die Kombination auch der Einfluss der Volllaststunden untersucht. Bei der untersuchten Kombination hat eine Erhöhung der Volllaststunden zw. 3500 und 8000 h/a kaum mehr Einfluss auf die Gestehungskosten, da die Reduktion der spezifischen Investitionskosten durch die steigenden mittleren Stromkosten ausgeglichen wird. Ab Volllaststunden von ca. 3500 h/a sind diese für die spezifischen Gestehungskosten nicht mehr entscheidend. Höhere Volllaststunden haben den Vorteil einer insgesamt erhöhten Produktion von  $H_2$  oder  $CH_4$  und damit einer erhöhten Substitution fossiler Energieträger, allerdings steigt dadurch auch insgesamt der Strombedarf im Energiesystem.





#### Quelle: Energieinstitut an der JKU Linz

Anmerkung: alle Werte ohne USt. Die Werte beziehen sich auf den Heizwert (LHV) von Wasserstoff und Methan. Inkludiert sind zudem die Kosten für die erforderliche Tankstelleninfrastruktur und die Endverbraucherabgaben. Im Anschluss an die ökonomische Bewertung aller Anwendungsfelder und der Kombination aus mehreren Anwendungsfeldern, wurden die volkswirtschaftlichen Effekte einzelner Anwendungsfelder (5a, 7a, 7b) und die der Kombination mittels dem, am Energieinstitut an der Johannes Kepler Universität Linz entwickelten Simulationsmodell MOVE2, simuliert.

Da die Anwendungsfelder und damit auch die Größe der Anlagen und deren Investitionsausgaben sehr unterschiedlich sind, ist eine Vergleichbarkeit zwischen den Anwendungsfeldern nur beschränkt möglich. Gemeinsam haben alle Anlagen, dass sie zu einer Erhöhung des österreichischen Bruttoinlandproduktes führen. Dieses basiert in allen Anwendungsfällen grundlegend auf:

- zusätzlichen Investitionsimpulsen durch die Errichtung der Power-to-Gas Anlagen,
- einer Reduktion der fossilen Energieimporte,
- den durch das Wirtschaftswachstum induzierten Anstieg der Löhne und somit des verfügbaren Einkommens,
- dadurch ausgelösten Beschäftigungseffekten und
- Sekundäreffekten resultierend aus den aufgeführten Auswirkungen.

In dem Anwendungsfall 7a und der Kombination kommt es zusätzlich zu einem Anstieg des privaten Konsums durch Anschaffung gasbetriebener Fahrzeuge.

Die Unterschiede in der Anzahl an errichteten Anlagen und dem Errichtungszeitraum liegt vor allem an den unterschiedlichen Zeithorizonten für einen möglichen Einsatz. Eine Umsetzung der Anwendungsfälle 7a bis 7b wäre bereits jetzt möglich während es für Anwendungsfeld 5a aktuell noch keinen Bedarf gibt (keine Überschussstunden aus Windkraftanlagen). Für das Anwendungsfeld 5a wird aus diesem Grund erst eine Errichtung der Anlagen ab dem Jahr 2020 simuliert. Die Kombination der Anwendungsfelder stellt eine mögliche Anlagenkonfiguration sowie einen potentiellen zukünftigen Einsatz unter geänderten Rahmenbedingungen dar und wird für das Jahr 2025 quantifiziert. Da eine weitere Entwicklung dieser Entwicklung noch schwer abgeschätzt werden kann, wurde eine Installation von zehn Anlagen in einem Jahr simuliert.

Einen Überblick über die zentralen Ergebnisse der volkswirtschaftlichen Analyse stellt Tabelle 33 dar.

# Tabelle 33: Zusammenfassung der zentralem Ergebnisse der volkswirtschaftlichen Analyse derAnwendungsfeldes 5a, 7a, 7b und der Kombination aus mehreren Anwendungsfeldern

	Anwendungsfelder						
	<u>5a</u>		<u>7a</u>		<u>7b</u>	Kombination	
	H <sub>2</sub>	CH4	H <sub>2</sub>	CH4	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>
Errichtete Anlagen (insgesamt)	6	6	10	10	10	10	10
Errichtungszeitraum	6 Jahre	6 Jahre	10 Jahre	10 Jahre	10 Jahre	1 Jahr	1 Jahr
Untersuchungs- zeitraum	2020- 2030	2020- 2030	2015- 2030	2015- 2030	2015- 2030	15 Jahre	15 Jahre
Bruttoinlandsprodukt (in Mio. € p.a.)	0,58	3,47	26,91	30,95	19,35	54,94	60,20
Privater Konsum (in Mio. € p.a.)	0,65	1,05	5,84	6,92	2,18	29,32	27,85
Investitionen (in Mio. € p.a.)	1,48	2,53	4,37	9,91	4,62	6,03	12,63
Nettoexporte (in Mio. € p.a.)	- 1,55	-0,15	16,71	14,12	12,55	19,59	19,72
Beschäftigte (Personen p.a.)	30	60	100	230	80	210	370

Allgemein kann festgestellt werden, dass in allen Fällen die Anwendung der Methanisierungsanlage (CH<sub>4</sub>) zu stärker ausgeprägten Ergebnissen führt. Dies liegt grundsätzlich an den höheren Investitionskosten dieser Anlagen, die höhere volkswirtschaftliche Effekte auslösen. Bezüglich der Beschäftigungseffekte wird ebenfalls in allen Anwendungsfällen ein höherer Level bei der Installation von Methanisierungsanlagen (CH<sub>4</sub>) erreicht.

## 11.3.4 Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas

Grundsätzlich bietet der Einsatz von Wasserstoff als Energieträger neuen Chancen einerseits zur Speicherung von Energie und andererseits zum Einsatz als alternativer Treibstoff im Mobilitätsbereich, um die Abhängigkeit von fossilen Energieträgern zu verringern. Als einen wesentlichen Faktor für die erfolgreiche Implementation von Projekten im Bereich Wasserstoffmobilität und Etablierung von Wasserstofftankstellen wird die Akzeptanz (*"social acceptance"*) der Bevölkerung genannt. Um zukünftig den Aufbau einer sogenannten *"hydrogen economy"* (Wasserstoffwirtschaft) zu forcieren, sind somit nicht nur technische, technologische und wirtschaftliche Aspekte bei der Umsetzung von Power-to-Gas Anlagen zu berücksichtigen sondern auch die soziale Dimension, welche sich durch verschiedensten Reaktionen bei unterschiedlichsten Akteuren aus den Bereichen Wirtschaft, Politik und Öffentlichkeit bemerkbar macht. Die Akzeptanz der Technologie und den damit eingesetzten Verfahren und Outputs ist deshalb bei unterschiedlichsten Stakeholdern wichtig.

Auf Basis bereits durchgeführter Studien aus der Akzeptanzforschung vor allem in Hinblick auf den Ausbau von erneuerbarer Energieanlagen (wie z.B. Windkraftanlagen, Wasserkraftanlagen) sowie der Energieinfrastrukturen (wie z.B. Aus- und Umbau der Stromnetzinfrastruktur) sowie Wasserstoff als Brennstoff bzw. als Technologie können die daraus gewonnen Erkenntnisse auch für das Power-to-Gas Konzept diskutiert werden, die auf die Akzeptanz von entsprechenden Anlagen bei der Planung und Umsetzung ausschlaggebend sein können (vgl. u.a. [5], S.71). Die Power-to-Gas Technologie als auch der Einsatz von Wasserstoff als Energieträger ist ein relativ neues Thema in Österreich, weshalb es wichtig ist, die Wahrnehmungen und Bedenken bei der Einführung dieser Neuheiten in die Gesellschaft auch anzusprechen (vgl. [6], S. 11 und [7]). Wichtig ist dies bei jenen Wasserstoffanwendungen im tagtäglichen Umgang, wie Erfahrungen aus dem Mobilitätsbereich zeigen. Um eine positive Wirkung auf die "social acceptance" für Wasserstoffanwendungen zu erreichen, ist es wesentlich, die wichtigsten Zielgruppen zu identifizieren und anzusprechen, um ihre Befürchtungen zu analysieren sowie entsprechende Partizipationsmaßnahmen einzuplanen (vgl. [6], S. 11f). Derzeit lässt sich allerdings schwer abschätzen, inwieweit das Wissen der Öffentlichkeit (und hier im Speziellen die Bevölkerung) zu dem Power-to-Gas Verfahren mit seinen Vor- und Nachteilen ausprägt ist, da momentan noch entsprechende empirische Studien (z.B. in Form von Umfragen fehlen).

Wesentlich ist in diesem Zusammenhang die Identifikation jener Faktoren, die die Akzeptanz unterschiedlichster gesellschaftlicher Gruppen beeinflussen. Dazu gehören nicht nur die Bevölkerung und direkt Betroffene sondern auch die Wirtschaft (Unternehmen aus Industrie, Energieversorgungsunternehmen, Wirtschaftsverbände), gesellschaftliche Gruppen (Verbraucherverbände, Umweltverbände) aber auch meinungsbildende Institutionen aus Medien und Politik, die sich mit dieser Thematik beschäftigen (vgl. [8], S. 68). Das Verständnis über die Gründe des Widerstandes und/ oder des Supports der neuen Wasserstofftechnologien bzw. den dazugehörigen Anlagen (wie z.B. Wasserstofftankstellen, Power-to-Gas Anlagen), kann Entscheidungsträger bzw. Projektverantwortliche dabei helfen Maßnahmen zu entwickeln, um eine breitere öffentliche Unterstützung zu erhalten und auch die Kommunikation zu der Öffentlichkeit dahingehend zu verbessern.

Um des Weiteren öffentliche Aufmerksamkeit für das Thema Wasserstofftechnologien zu gewinnen, braucht es eine breite gesellschaftliche Debatte sowie Bilder und Kontexte, die an die Alltagswelt künftiger Nutzer anschließen (vgl. [9]). Im Kontext der Akzeptanzthematik ist hier die Schaffung eines positiven Images in der jeweiligen Kommune und in der lokalen Bevölkerung für Wasserstoff und die Technologie Power-to-Gas wichtig. Dabei ist es wesentlich, hervorgebrachte Befürchtungen gegenüber dem jeweiligen Projekt auch zu thematisieren, um bspw. die gesundheitlichen Auswirkungen (elektromagnetische Felder, Elektrosmog) oder naturschutzrechtliche Bedenken auszuschließen bzw. zu minimieren. Auch Argumente für die Notwendigkeit der Realisierung der Anlage und deren positive Wirkung können entsprechend die Akzeptanz der Öffentlichkeit beeinflussen. Ein Argument könnte dahin gehen, dass die mit dem Stromnetzausbau negativ assoziierten Effekte durch Power-to-Gas-Anlagen in dem Sinn reduziert werden können, als dass die vorhandene Strom- und Gasinfrastruktur genutzt wird. Zusätzlich kann ein positives und kommuniziertes

Image von Power-to-Gas dazu beitragen, dass der benötigte Wasserstoff im Elektrolyseprozess von Anfang an und vollständig aus erneuerbaren Energien (Windkraft und Solarenergie) erzeugt wird (vgl. [10], S.20). Kommerzialisierung findet allerdings erst dann statt, wenn der weiteren Öffentlichkeit gezeigt wurde, dass mit den mit Wasserstoff assoziierten Sicherheitsrisiken adäquat umgegangen werden kann. Durch die Einführung von Politikmaßnahmen für Technologien, die von Vorteil für Gesellschaft und Umwelt sind (Sicherheitsstandards, spezifische Energieressourcen zur Produktion von Wasserstoff für Subventionszuschuss, Einfluss auf das Design des technologischen Systems etc.), können diverse Bedenken bei den unterschiedlichsten Akteuren verringert werden. Diese beeinflussen wiederum die Wahl des Standortes für die Power-to-Gas Anlagen z.B. Erteilung von Genehmigungen für den Bau nur für jene Standorte, wo es keine Sicherheitsbedenken gibt. Hier zeigt sich auch aus Erfahrungen von der Planung und Realisierung anderer Energieinfrastrukturprojekte wie z.B. Windkraftanlagen oder Hochspannungsleitungen/masten, dass kein allzu großer Eingriff in das Landschaftsbild durch die Anlage (z.B. in Form von kleinen Containeranlagen) erfolgen sollte. Dass beim Einsatz von Power-to-Gas Anlagen die bereits existierenden Infrastrukturen wie z.B. Gasnetz/Stromnetz sowie vorhandene Windkraftanlagen für den Transport von Methan genutzt werden, kann auch als ein weiterer Vorteil gegenüber anderen Infrastrukturmaßnahmen dargestellt werden.

Generell gilt es, all jene Faktoren, die die Akzeptanz eines Projektes beeinflussen, in der Planung und Realisierung von zukünftigen Power-to-Gas Projekte zu thematisieren. Wie bereits erwähnt, ist die Informationsweitergabe über die generelle Befürwortung der Technologie an die allgemeine Öffentlichkeit förderlich, um dahingehende Einstellungen positiv zu beeinflussen. Hinsichtlich der Partizipation kann einerseits auf unterschiedliche Informationsmöglichkeiten zurückgegriffen werden, wie einige Good-Practice Beispiele aus den Bereichen Wasserstoffmobilität, Windkraft und Hochspannungsleitungen zeigen. Hier gilt es auch die Betroffenen in den Planungsprozess einzubauen sowie den Informationsfluss und die Transparenz in Hinblick auf die Vor- und Nachteile der Technologie zu stärken.

Um Wissen und Bewusstsein bei unterschiedlichen Zielgruppen für ein wasserstoffbasiertes Energieversorgungssystem und damit den Weg zu einer *"hydrogen economy & society"* zu erreichen, wird die Entwicklung und Durchführung von *"policies"* und Strategien in den Bereichen Bewusstseinsbildung (Abbau von Vorurteilen und Risikenbedenken) empfohlen (vgl. [11]). Dabei können vor allem Demonstrationsprojekte ein höheres Bewusstsein in der gesamten Gesellschaft erreichen – nicht nur in der breiteren Zivilgesellschaft sondern auch bei Stakeholdern aus Industrie, der öffentlichen Hand und anderen Entscheidungsträgern. Dadurch wird auch Vertrauen (z.B. der potenziellen Nutzer von wasserstoffbetriebenen Fahrzeugen) in die Technologie über Demonstration in Form von Infrastruktur als auch durch die Anwendung (z.B. durch die Sichtbarkeit von Fahrzeugen im öffentlichen Raum) erreicht. Zielgerichtete, ehrliche und aufklärende Kommunikation können die Nutzungs- und Kaufbereitschaft von Wasserstofftechnologien fördern. Gerade bei der Wasserstoffmobilität herrscht derzeit teilweise noch Unsicherheit hinsichtlich der Anschaffungskosten von Fahrzeugen, ökologischen Nachhaltigkeit des Wasserstoffs und der Einordnung von Wasserstoff in den Kontext der Elektromobilität (vgl. [8], S.70). Damit zeigt sich, dass auf Basis vorhandener Sekundärliteratur zu *"social acceptance"* unterschiedlichster Energieinfrastrukturmaßnahmen nicht nur hauptsächlich technologische und technische Hindernisse, sondern auch die nicht-technischen Barrieren entlang der Entwicklung und Verbreitung von wasserstoff-basierten Technologien behandelt werden sollen (vgl. [6], S. 34). Dabei kann ein genereller Handlungsbedarf bei der Einführung von Wasserstofftechnologien, im Speziellen im Rahmen der Marktvorbereitung festgestellt werden, sodass bei Impuls- und Leuchtturmprojekten auch Fragen im Zusammenhang der Akzeptanz in der Gesellschaft durch objektive Informationsvermittlung mitgedacht werden und somit der Informationsbedarf zu Wasserstoff als Energieträger in der Bevölkerung gedeckt wird (vgl. [12]). Eine vertiefte qualitative als auch quantitative Analyse könnte ein besseres Verständnis zu den Motiven und Argumenten für/gegen ein Power-to-Gas-Projekt, im Fall von gegebenen Akzeptanzproblemen vor Ort, geben.

Die Notwendigkeit und Wichtigkeit der gesellschaftlichen Akzeptanz wird grundsätzlich bei Großprojekten aller Art (wie z.B. auch Energieinfrastrukturmaßnahmen) in zahlreichen durchgeführten Studien hervorgehoben und es wurde auch aufgezeigt, in welcher Art und Dimension Akzeptanzprobleme in den jeweiligen Projektphasen auftreten. Dabei zeigte sich, dass sich zeitliche Verzögerungen bei der Umsetzung von Projekten wie z.B. im Windkraftanlagenbau oder beim Bau von neuen Stromnetzinfrastrukturen nicht ausschließlich auf Widerstände der lokalen Akteure (wie z.B. lokale Bevölkerung und/oder lokale Politiker, Verbände und Interessensvertretungen, Initiativen) zurückzuführen ist, sondern oftmals auch die rechtlichen und institutionellen Rahmenbedingungen (wie z.B. Dauer der Genehmigungsverfahren, Qualität der Gutachten) eine wesentliche Rolle bei der Realisierung von entsprechenden Projekten spielen. Hier bleibt offen, inwieweit im einzelnen Fall eine unmittelbare Betroffenheit z.B. von Anrainern, Bevölkerung durch die Realisierung einer Power-to-Gas Anlage gegeben ist (vorausgesetzt der Bau der Anlage erfolgt auch in Wohngebietsnähe). Derzeit kann der Akzeptanzlevel dazu von politischen Entscheidungsträgern auf den unterschiedlichsten Ebenen nicht direkt abgeschätzt werden; diese sind gegenwärtig z.B. nicht direkt in der Genehmigung von Power-to-Gas-Anlagen integriert. In diesem Kontext gilt es auch, die zukünftige Rolle von regionalen und lokalen Behörden beim Genehmigungsprozess von Power-to-Gas Anlagen abzuklären.

Resümierend kann festgehalten werden, dass grundsätzlich die sozialen Folgen und die unterschiedlichen Akzeptanzniveaus unterschiedlichster Akteure aufgrund des derzeitigen Forschungs- und Entwicklungsstadions von Power-to-Gas noch nicht eingeschätzt werden können, sodass auch das vorliegende Papier auf den Erfahrungen im Bereich der Energieinfrastrukturen sowie der Wasserstofftechnologien zurückgreift. Im Projekt Hytrust zeigte sich, dass *in den bislang vorliegenden Szenarien und Roadmaps zur Einführung der Wasserstofftechnologie die gegenwärtigen und zukünftige soziale Entwicklungen, Wahrnehmungen und Bedeutungszuschreibungen weitestgehend unberücksichtigt bleiben.* Eine weiterführende soziale Begleitforschung zur Akzeptanz von neuen Technologien wird in diesem Kontext deshalb als weiteres wichtiges Forschungsfeld gesehen (vgl. [13]).

### 11.3.5 Zusammenfassung

Die **rechtlichen Analysen** beschäftigen sich mit der aktuellen rechtlichen Situation der Untergrundspeicherung verschiedener Energieträger, mit Schwerpunkt auf Wasserstoffeinspeisung in bestehende Gasspeicher. Offene Punkte und Problemstellungen wurden aufgezeigt und die aktuelle rechtliche Situation von Power-to-Gas Anlagen im Detail analysiert. Daraus abgeleitet wurden Empfehlungen für die Anpassung des Rechtsrahmens formuliert.

Für die **ökonomische Bewertung** von Power-to-Gas im Rahmen des Projektes Underground Sun Storage wurden im Projektkonsortium neun Anwendungsfelder ausgewählt und quantitativ bewertet. Die Anwendungsfelder unterscheiden sich dabei in der Größenordnung, dem Systemnutzen, dem Produkt (Wasserstoff, Methan oder Strom) und dem jeweiligen Benchmark im Energiesystem. Einzelne Anwendungsfelder sind für sich alleine betrachtet meist mit hohen Gestehungskosten verbunden und hängen stark von den erreichten jährlichen Volllaststunden der Power-to-Gas Anlage ab. Aufgrund der zusätzlichen Komponenten und des geringeren Gesamtwirkungsgrades sind die spezifischen Gestehungskosten von synthetischem Methan grundsätzlich höher als jene von Wasserstoff. Durch die Rückverstromung wird der Wirkungsgrad über die gesamte Produktionskette deutlich verringert und die spezifischen Kosten steigen. Vor allem bei geringeren Volllaststunden haben die Investitionskosten großen Einfluss auf die Gestehungskosten, wobei zukünftig von einer deutlichen Investitionskostenreduktion auszugehen ist.

Im Vergleich mit den Benchmarks im Energiesystem sind vor allem die Produktion eines erneuerbaren Produkts und die Bereitstellung von negativer Regelenergie interessant. Dies ist hauptsächlich auf die hohen Volllaststunden dieser beiden Anwendungsfelder zurückzuführen. Bei anderen Anwendungsfeldern werden hingegen nur wenige Volllaststunden erreicht und trotz sehr geringer Strombezugskosten, wie im Falle der Nutzung von Überschüssen aus Windkraftanlagen liegen die spezifischen Gestehungskosten sehr hoch. In Kombination mit anderen Anwendungsfeldern könnten diese aber aufgrund der geringen Strombezugskosten sehr interessant sein.

Zur Optimierung der Wirtschaftlichkeit durch Erhöhung der Volllaststunden wurde zusätzlich zu den einzelnen Anwendungsfeldern eine Kombination aus mehreren Anwendungsfeldern betrachtet. Die Kombination beinhaltet die Nutzung von Überschussstrom aus Windkraftanlagen (250 h/a), die Bereitstellung negativer Regelenergie (3300 h/a) und einen zusätzlichen Strombezug aus dem öffentlichen Stromnetz zu Spotmarktpreisen (inkl. Herkunftsnachweis für erneuerbaren Strom). Der erzeugte Wasserstoff bzw. optional das synthetische Methan werden als Treibstoff genutzt oder in das Erdgasnetz eingespeist. Die Volllaststunden der Power-to-Gas Anlage wurden mit 6000 h/a festgelegt. Dadurch können zukünftig spezifische Gestehungskosten von rund 13 Cent je kWh Wasserstoff bzw. 18 Cent je kWh synthetisches Methan erreicht werden. Eine Sensitivitätsanalyse zeigt, dass bei der untersuchten Kombination eine Erhöhung der Volllaststunden zw. 3500 und 8000 h/a kaum mehr Einfluss auf die Gestehungskosten hat, da die Reduktion der spezifischen Investitionskosten durch die steigenden mittleren Stromkosten ausgeglichen wird. Höhere Volllaststunden haben zwar den Vorteil einer insgesamt erhöhten Produktion von H<sub>2</sub> oder CH<sub>4</sub> und damit einer erhöhten Substitution fossiler Energieträger, allerdings steigt dadurch auch insgesamt der Strombedarf im Energiesystem.

Die **volkswirtschaftlichen Effekte** ausgewählter Anwendungsfelder und die der Kombination wurden mit dem am Energieinstitut an der JKU Linz entwickelten Simulationsmodell MOVE2 simuliert. Die Größe der Anlagen und deren Investitionen sind sehr unterschiedlich und so ein Vergleich der Anwendungsfelder nur eingeschränkt möglich. Gemeinsam haben alle Anlagen, dass sie zu einer Erhöhung des österreichischen Bruttoinlandproduktes führen. Dieses basiert in allen Anwendungsfällen grundlegend auf:

- zusätzlichen Investitionsimpulsen durch die Errichtung der Power-to-Gas Anlagen,
- einer Reduktion der fossilen Energieimporte,
- den durch das Wirtschaftswachstum induzierten Anstieg der Löhne und somit des verfügbaren Einkommens,
- dadurch ausgelösten Beschäftigungseffekten und
- Sekundäreffekten resultierend aus den aufgeführten Auswirkungen.

Bei Herstellung eines erneuerbaren Produkts für den Mobilitätsbereich und dem kombinierten Anwendungsfeld kommt es zusätzlich zu einem Anstieg des privaten Konsums durch Anschaffung gasbetriebener Fahrzeuge. Allgemein kann festgestellt werden, dass in allen Fällen die Anwendung der Methanisierungsanlage (CH<sub>4</sub>) zu stärker ausgeprägten Ergebnissen führt. Dies liegt grundsätzlich an den höheren Investitionskosten dieser Anlagen, die höhere volkswirtschaftliche Effekte auslösen. Bezüglich der Beschäftigungseffekte wird ebenfalls in allen Anwendungsfällen ein höherer Level bei der Installation von Methanisierungsanlagen (CH<sub>4</sub>) erreicht.

Das Potential der Wasserstoffeinspeisung in das österreichische Erdgasnetz hängt von mehreren Einflussfaktoren, wie geltenden Normen und Richtlinien, H2-Verträglichkeit der Gasnetzstruktur und Erdgasdurchfluss Komponenten, ab. Bei Einspeisung in Transitleitungen ist zu beachten, dass die Gasqualität je nach Herkunft des Erdgases unterschiedlich ist und bereits Wasserstoff enthalten sein kann. Hierbei ist zu klären ob eine zusätzliche H<sub>2</sub>-Einspeisung und eine Weiterleitung in das jeweilige Nachbarland möglich sind. Bei Transportleitungen bestimmen in vielen Fällen weniger die physikalischen Eigenschaften als Gaslieferverträge, ob und wieviel Erdgas über die Leitung fließt. Im Verteilnetz hingegen folgt der Durchfluss und die Richtung des Erdgases physikalischen Bedingungen, wobei der Absatz, abhängig von der jeweiligen Verbraucherstruktur, teilweise starken Schwankungen unterliegt.

Wesentliche Bedeutung kommt Normen und Richtlinien wie der ÖVGW-RL 31 zu, welche den maximalen Volumenanteil von aktuell 4 Vol.-% H<sub>2</sub> im Erdgas sowie die Einhaltung brenntechnischer Kennwerte (Wobbe-Index, Brennwert, relative Dichte) regeln. Brenntechnische Größen hängen im Wesentlichen von der Herkunft des Erdgases (Russland, Nordsee) ab. Während der Grenzwert für die relative Dichte für Erdgas aus Russland bereits bei einem Volumenanteil von 4-5 Vol.-% H<sub>2</sub> unterschritten wird, kann der Wobbe-Index auch bei einem Volumenanteil von 15 Vol.-% H<sub>2</sub> als kritisch zu sehen. Hinsichtlich der H<sub>2</sub>-Verträglichkeit einzelner Komponenten besteht vor allem bei Gasturbinen

sowie Transport- und Speicherverdichtern Anpassungsbedarf. Weiterer Anpassungsbedarf besteht zudem auch bei CNG-Fahrzeugen (aktuell max.  $2 \text{ Vol.-}\% \text{ H}_2$ ) und Prozessgaschromatographen (aktuell kein H<sub>2</sub> messbar). Bezüglich der Verträglichkeit von H<sub>2</sub> in Porenspeicher ist hingegen von erheblichem Forschungsbedarf auszugehen.

Anhand einer Analyse unterschiedlicher Beispielnetze konnte gezeigt werden, dass sich die Erdgasdurchflüsse stark unterschieden und es vor allem in Netzabschnitten mit vorwiegend Industriekunden keine typischen Verbrauchsprofile gibt. Die in den Analysen angegebenen Potentiale für die Wasserstoffeinspeisung können daher nur als Richtwerte dienen, eine detaillierte Potentialerhebung muss aufgrund der unterschiedlichen Beschaffenheit für jeden Netzbereich gesondert erfolgen. Auf Basis der möglichen Wasserstoff-Aufnahmekapazität des österreichischen Erdgasnetzes erfolgte eine Abschätzung der möglichen installierten Gesamtleistung von Power-to-Gas Anlagen und des in Form von H<sub>2</sub> speicherbaren Stroms. Während bei Auslegung auf den geringsten Erdgasdurchfluss im Sommerlastfall Power-to-Gas Anlagen mit insgesamt 60 MWel integriert werden können, steigt das Potential bei Auslegung auf den mittleren Durchfluss auf insgesamt 176 MWel. Nach welchen Kriterien die Auslegung der Power-to-Gas Anlage erfolgt, hängt stark vom jeweiligen Anwendungsfeld, dem betrachteten Netzabschnitt und den alternativen Nutzungsmöglichkeiten für den produzierten Wasserstoff ab. Bei Speicherung von Überschüssen aus volatiler Stromerzeugung ist vor allem die Charakteristik der Stromerzeugung und des Gasverbrauchs in den unterschiedlichen Regionen zu beachten. Während beispielsweise im Burgenland und in Niederösterreich eine hohe Stromerzeugung aus Windkraft, jedoch nur eine geringe Einspeisekapazität in das Erdgasnetz möglich ist, weisen andere Bundesländer hohe Einspeisekapazitäten (z.B. OÖ und Wien) aber nur geringe Stromproduktion aus Wind und PV auf.

Für den Aufbau einer sogenannten "Hydrogen Economy" (Wasserstoffwirtschaft) ist neben technologischen und wirtschaftlichen Aspekten auch die **Akzeptanz der Bevölkerung** als wesentlicher Faktor zu beachten. Die sozialen Folgen und unterschiedlichen Akzeptanzniveaus der verschiedenen Akteure können allerdings aufgrund des derzeitigen Forschungs- und Entwicklungsstadiums von Power-to-Gas noch nicht eingeschätzt werden, sodass auf Erfahrungen und Studien aus den Bereichen der Energieinfrastrukturen sowie Wasserstofftechnologien zurückgegriffen werden muss. Zukünftig wird eine soziale Begleitforschung zur Akzeptanz von Power-to-Gas als wichtiges Forschungsfeld gesehen.

Um eine positive Wirkung auf die soziale Akzeptanz für Wasserstoffanwendungen zu erreichen, müssen die jeweiligen Zielgruppen identifiziert und die relevanten Einflussfaktoren thematisiert werden. Dabei ist es wesentlich, die Betroffenen in den Planungsprozess einzubinden und hervorgebrachte Befürchtungen gegenüber dem jeweiligen Projekt anzusprechen. Argumente für die Notwendigkeit der Realisierung der Anlage, die Nutzung vorhandener Infrastrukturen und die dadurch mögliche Reduktion der negativen Effekte des Stromnetzausbaus sowie eine vollständige Erzeugung des Wasserstoffs aus erneuerbaren Energie können die Akzeptanz der Öffentlichkeit positiv beeinflussen. Zudem muss gezeigt werden, dass mit den mit Wasserstoff assoziierten Sicherheitsrisiken adäquat umgegangen werden kann und kein allzu großer Eingriff in das Landschaftsbild entsteht. Gerade bei der Wasserstoffmobilität herrscht derzeit teilweise noch Unsicherheit hinsichtlich der

Anschaffungskosten von Fahrzeugen, ökologischen Nachhaltigkeit des Wasserstoffs und der Einordnung von Wasserstoff in den Kontext der Elektromobilität. Um Wissen und Bewusstsein für ein wasserstoffbasiertes Energiesystem bei den unterschiedlichen Zielgruppen zu erhöhen, wird die Entwicklung von Strategien im Bereich der Bewusstseinsbildung empfohlen. Demonstrationsprojekte aller Art spielen dabei eine wesentliche Rolle und können das Vertrauen in die Technologie stärken.

Zeitliche Verzögerungen bei der Umsetzung von Projekten sind allerdings nicht ausschließlich auf Widerstände der lokalen Akteure zurückzuführen, sondern sind oftmals auch bedingt durch rechtliche und institutionelle Rahmenbedingungen (z.B. Dauer von Genehmigungsverfahren). In diesem Kontext gilt es daher, die zukünftige Rolle von regionalen und lokalen Behörden beim Genehmigungsprozess von Power-to-Gas Anlagen abzuklären.

Insgesamt ist auf Basis der rechtlichen und ökonomischen Analysen im Projekt Underground Sun Storage zu konstatieren, dass eine Forcierung der Entwicklung des Systems Power-to-Gas sowohl technologisch als auch regulatorisch sowie aus der Perspektive intelligenter Geschäftsmodelle weiterzuentwickeln ist, um die volkswirtschaftlich und systemisch positiven Beiträge realisieren zu können.

# 11.4 Verweis auf Veröffentlichungen und andere Dokumente

In der nachfolgenden Tabelle sind alle Veröffentlichungen und Dokumente, die im Zuge des Projekts Underground Sun Storage erstellt wurden, aufgelistet.

Nr.	Studie/Bericht/Präsentation	Jahr	Autoren	
	Bericht:			
1	Underground Sun Storage –	2015	Ch. Friedl et al.	
	Gesellschaftliche Akzeptanz von Power-to-Gas			
	Bericht:			
2	Underground Sun Storage –	2015	G. Reiter et al.	
	Ökonomische Bewertung der Anwendungsfelder			
	Bericht:			
3	Underground Sun Storage –	2015	G Reiter et al	
Ŭ	Potential der Wasserstoff-Einspeisung in das österreichische	2010		
	Erdgasnetz			
4	Bericht:	2016	K. De Bruvn	
·	Underground Sun Storage – Rechtliche Analysen	2010		
5	Präsentation:	2015	R. Tichler	
	EPCON 2015 - Neue Geschäftsmodelle – 29.04.2015 –			
	Liegt die Zukunft in der Umwandlung von "überschüssiger"			
	Energie?			
	Prasentation:			
~	IIR Fachkonferenz Hybride Netze 3 4. Dezember 2014,	0044		
6	Mauerbach-	2014	R. Lichler	
	Yower-to-Gas als Schlusseltechnologie für die Speicherung und			
	Prasentation. 12. Österreishische Photovolteik Tagung 5. Nevember 2014			
7	Power to Cas along flexibal alongetzbaro. Technologia zur	2014	R. Tichler	
	verbesserten Integration erneuerbarer Energieträger			
	Präsentation:			
8	14th IAEE European Conference - Rome 2014 –	2014	R Tichler	
Ŭ	Macroeconomic effects of the energy storage system power-to-gas	2014		
	Präsentation:			
	11. Österreichisches Windenergie-Symposium – 4.12.2014 –			
9	Power-to-Gas - ein flexibles System zur optimierten Integration	2014	R. Tichler	
	von Windenergie in das Energiesystem			
	Präsentation:			
10	Workshop APG – Energieinstitut an der JKU Linz / 26.11.2014 –	2014	R. Tichler	
	Power-to-Gas - Auswirkungen auf Netze			
	Präsentation:			
11	14. Symposium Energieinnovation Graz –	2016	A Zoupor	
11	Wirtschaftlichkeit von Power-to-Gas durch Kombination	2010	A. Zaunei	
	verschiedener Anwendungsfelder			
12	Buchbeitrag:			
	STORING ENERGY: with Special Reference to Renewable Energy	2016	R. Tichler, S. Bauer	
. 2	Sources - Trevor M. Letcher - Elsevier Science & Tech, 2016			
	Chapter 19: Power-to-gas			
13	Buch:	2014	M. Lehner et al	
	Power-to-Gas: Technology and Business Models, Springer 2014			

# 11.5 Literaturverzeichnis

- Reiter G, Lindorfer J. Möglichkeiten der Integration von Power-to-Gas in das bestehende Energiesystem. In: Steinmüller H., Schneider F., Hauer A. Jahrbuch Energiewirtschaft 2013, NWV-Verlag.
- [2] Steinmüller H, Tichler R et al. (2014) Power-to-Gas Eine Systemanalyse. Markt- und Technologiescouting und -analyse. Im Auftrag des BMWFJ.
- [3] Tichler R, Lindorfer J, Friedl C, Reiter G, Steinmüller H (2014) FTI-Roadmap Power-to-Gas für Österreich. Berichte aus Energie- und Umweltforschung 50/2014, Bundesministerium für Verkehr, Innovation und Technologie. http://www.energiesystemederzukunft.at/nw\_pdf/1450\_fti\_roadmap\_power\_to\_gas.pdf, Zugriff am 03.08.2015
- [4] M. Lehner, R. Tichler, H. Steinmüller, M. Koppe, Power-to-Gas: Technology and Business Models Springer Briefs in Energy, 2014.
- [5] Huijts, N.M.A., De Groot, J.I.M., Molin, E.J.E., van Wee, B. (2013) Intention to act towards a local hydrogen refuelling facility: Moral considerations versus self-interest. Transportation Research Part A: Policy and Practice 48, S.63-74
- [6] European Commission (2006) Introducing Hydrogen as an energy carrier. Safety, regulatory and public acceptance issues. European Commission. Luxembourg. Download unter: ftp://ftp.cordis.europa.eu/pub/fp7/energy/docs/hydrogen\_22002\_en.pdf (letzter Abruf: 19.2.2015)
- [7] Projekt Hytrust unter: http://www.hytrust.de/de/aktuelles.html (letzter Abruf am 27. Februar 2014).
- [8] Canzler, W., Deibel, I. (2011) Wasserstoffbasierte Technologien im Verkehr auch eine Frage von Vertrauen und Vertrautsein. Artikel aus: Technikfolgenabschätzung, Theorie und Praxis, ISSN 1619-7523, Jg.20, Nr.1, 2011, S.68-70
- [9] Kaiser, M., Zimmer, R. (2013) Diskursanalyse von Positionen zur Wasserstoffmobilität. Arbeitsbericht Nr. 01 im Rahmen des Projektes "HyTrust Auf dem Weg in die Wasserstoffgesellschaft". Unabhängiges Institut für Umweltfragen, Berlin. Download unter: http://www.hytrust.de/fileadmin/download/HT-AB-01\_Diskursanalyse.pdf (letzter Abruf: 20.Februar 2015).
- [10] Krstacic-Galic, A., Marz, L. (2011) Konsenschancen des energietechnologischen Paradigmenwechsels: Das Beispiel der Wasserstoff- und Brennstoffzellentechnologie, WZB Discussion Paper, No. SP III 2011-402
- [11] Project Hysociety unter: http://ec.europa.eu/research/energy/pdf/6\_hysociety\_en.pdf und http://www.vgb.org/fue\_projekt239.html (letzter Abruf: 27. Februar 2015).
- [12] Bundesministerium für Wirtschaft und Arbeit (2005) Strategiepapier zum Forschungsbedarf in der Wasserstoff-Energietechnologie; Strategiekreis Wasserstoff des Bundesministeriums für Wirtschaft und Arbeit, Forschungsbericht Nr. 546. München. Download unter: http://www.iphe.net/docs/Meetings/France\_1-05/German\_Strategy\_Report.pdf (letzter Abruf: 27. Februar 2015)
- [13] http://www.fvee.de/fileadmin/politik/10.06.vision\_fuer\_nachhaltiges\_energiekonzept.pdf (letzter Abruf: 27. Februar 2015).

# 11.6 Kontaktdaten

Energieinstitut an der Johannes Kepler Universität Linz Dr. Robert Tichler Altenberger Straße 69, 4040 Linz Tel.: +43-732-2468-5656 Fax: +43-732-2468-5651 E-Mail: office@energieinstitut-linz.at www.energieinstitut-linz.at

Autoren: R. Tichler, A. Zauner, M. Baresch, K. De Bruyn, C. Friedl, M. Furtlehner, S. Goers, J. Lindorfer, J. Mayerhofer, G. Reiter, M. Schwarz
## **12** Ausblick und Empfehlungen

Die Bereitstellung großvolumiger und saisonaler Speicher ist eine zentrale Herausforderung bei der Umstellung unserer Energiegewinnung auf erneuerbare fluktuierende Quellen. Untertagegasspeicher erfüllen bereits heute diese Speicheraufgabe, es bleibt aber zu prüfen, wie diese Speicher für erneuerbare Energie über einen Power-to-Gas Prozess zugänglich gemacht werden können. Erstmals wurden daher im Rahmen eines interdisziplinären Projektes und unter Einschluss eines Feldversuches an einer realen Gaslagerstätte die Fragestellungen, die sich aus der Wasserstoffspeicherung/beimischung ergeben, untersucht. Dabei konnte festgestellt werden:

Für die untersuchten geochemischen, geophysikalischen und materialtechnischen Rahmenbedingungen ist keine Beeinträchtigung der Speicherintegrität bei Wasserstoffbeimengungen von 10 Vol.-% bzw. 10 bar Wasserstoffpartialdruck zu erwarten. Bei der erstmaligen Beaufschlagung des Reservoirs mit Wasserstoff wird es zu Initialeffekten kommen. Forschungsbedarf gibt es noch im Bereich der Geochemie und hier insbesondere bei der Löslichkeit von Wasserstoff im Lagerstättenwasser.

Im Rahmen des Projektes Underground Sun Storage konnte neben den rein wissenschaftlichen Erkenntnissen auch gezeigt werden, dass die Umwandlung von erneuerbarer Energie in den speicherbaren Energieträger Gas die Lösung für die saisonale großvolumige Energiespeicherung ist. Die Form der Energiespeicherung ist bei zunehmendem Ausbau des Anteils der Erneuerbaren am Gesamtenergiebedarf von entscheidender Bedeutung, um saisonale Schwankungen im Energiebedarf und in der Energiebereitstellung auszugleichen und damit letztendlich Versorgungssicherheit zu jedem Zeitpunkt im Jahr sicherzustellen.

Die umfassenden, positiven Ergebnisse konnten anhand einer, für Erdgas- Speicherung repräsentativen, Sandsteinlagerstätte im österreichischen Molassebecken generiert werden. Auf Grund der abweichenden Situation in vielen anderen Erdgasspeichern (anderer Typ, andere geologische Situation, etc...) können die Ergebnisse nicht direkt übertragen werden. Die Erfahrungen mit den unterschiedlichen Untersuchungsmethoden und interdisziplinären Ansätzen mit ihren Ergebnissen liefern jedoch einen guten Leitfaden zur Untersuchung weiterer Speicherformationen und Speicheranlagen. Die wesentlichen Parameter dazu wurden definiert.

Offene Fragestellungen betreffen noch allfällige betriebliche Auswirkungen im kommerziellen Betrieb, die durch die Veränderung der Zusammensetzung des Speichergases und damit auch des Brennwertes des Speichermediums hervorgerufen werden. Die tatsächliche Zulassung von Wasserstoff in der grenzüberschreitenden Erdgasinfrastruktur kann nur in einer pan-europäischen Betrachtung erfolgen. Hier wird daher empfohlen, auf europäischer Ebene die nächsten Schritte einzuleiten.

Zusammenfassend wurde in einem Zeitrahmen von vier Jahren sowohl die Integrität der Speicher hinreichend bestätigt, als auch der Feldversuch mit den dazugehörigen Anlagen geplant, errichtet und betrieben. Damit ist es gelungen, nicht nur wertvolle wissenschaftliche Ergebnisse zu erzielen, sondern auch die Leistungsfähigkeit der Gasspeicher in einem erneuerbaren Energien System zu demonstrieren. Darüber hinaus wurde Potential identifiziert, Erdgaslagerstätten als natürliche Reaktoren für die mikrobiologische Methanisierung von Wasserstoff und Kohlendioxid zu nutzen. Dies gab den Ausschlag für das Folgeprojekt Underground Sun Conversion. Neben der Entwicklung einer saisonalen Speicherlösung für erneuerbare Energie ist es möglich, zugleich erneuerbares Erdgas zu produzieren, die bestehende Infrastruktur uneingeschränkt zu nutzen und damit einen nachhaltigen Kohlenstoffkreislauf zu entwickeln.



Abbildung 115: Underground Sun Conversion – Ein nachhaltiger Kohlenstoffkreislauf (Quelle: RAG).

Nähere Infos gibt es unter: www.underground-sun-conversion.at.

## 13 Anhang

Abbildung	1: Systembild Energiespeicherung durch Power to Gas
Abbildung	2: Überblicksmatrix H <sub>2</sub> -Toleranz ausgewählter Elemente im Erdgasnetz
Abbildung	3: Kern des Deckgebirges aus der Bohrung NU C2
Abbildung	4 Messplatz zur Bestimmung der Gaspermeabilität
Abbildung	5: Ermittelte Durchbruchskurven an den trockenen Kernen BA 26 und NU
	29403 bei Strömungsgeschwindigkeiten von 3,5 cm/min
Abbildung	6: Vergleich der Verdrängungsfunktion an den feuchten Kernen NU 29403 /8.9
	cm/min) und BA 26 (4.3 cm/min)
Abbildung	7: Vergleich der Verdrängungskurven gemessen am haftwassergesättigten
	Kern BA 26 bei Strömungsgeschwindigkeiten von 4.3 und 6.5 cm/min34
Abbildung	8: Drucktransmitter: a) Einbaulage mit Sicherheitsventil; b) unterer Reaktorteil;
	c) oberer Reaktorteil35
Abbildung	9: Visualisierung der Datenerfassung
Abbildung	10: Prozess – Gas – Chromatograph mit Darstellung der Kapillarleitungen36
Abbildung	11: Trocknung des Sandes im Drehrohr (a), Lochblech mit Filterpapier (b),
	Reaktor leer (c), Reaktor befüllt (d-e)
Abbildung	12: Druckverlauf von Reaktor mit 10 bar über die Versuchszeit
Abbildung	13: Temperaturverläufe von Reaktor 10 bar über die Versuchszeit
Abbildung	14: Druckverlauf Reaktor 10 bar und Umgebungstemperatur40
Abbildung	15: Verhältnis CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> für Reaktor 10 bar41
Abbildung	16: Verhältnis CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> für Reaktor 25 bar41
Abbildung	17: Verhältnis $CH_4/H_2$ für Reaktor 40 bar42
Abbildung	18: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 10 bar Reaktordruck43
Abbildung	19: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 20 bar Reaktordruck44
Abbildung	20: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 10 bar Reaktordruck45
Abbildung	21: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 20 bar Reaktordruck45
Abbildung	22: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung bei 10 bar Reaktordruck und erhöhtem
	Durchfluss
Abbildung	23: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung mit Methan als Hintergrundgas, Druck
	10 bar und Prüfgas 8% $H_2$ und 92% $CH_4$ 47
Abbildung	24: Durchbruchskurven mit 1. Ableitung mit Methan als Hintergrundgas, Druck
	10 bar und Prüfgas 20% H <sub>2</sub> und 80% CH <sub>4</sub> 47
Abbildung	25: Verdrängung des Stickstoffes bei 10 Bar und 8% $H_2$ bzw. bei 20 Bar und
	20% H <sub>2</sub>
Abbildung	26: Verdrangung des Gasgemisches bei 10 Bar und 8% bzw. bei 20 Bar und
	20% H <sub>2</sub>
Abbildung	27: Durchbruchkurven mit 1. Ableitung bei nassen Bedingungen, Druck 10 bar50
Abbildung	28: Durchbruchkurven nasse Bedingungen, Druck 20 bar
Abbildung	29: Verdrangung des Gemisches bei 10 Bar und 8% $H_2$ am feuchten Kern51
Abbildung	30: Schnitte geologischer Modellierung: Digitalisierung struktureller Karten,
	interpretetion and flow simulation and construction
Abbilduras	Interpretation and now simulation grid construction
	31. vertenung der Wasserstonkonzentration in der Lagerstatte über die Zeit
Appliques	52. Veryreich der raumichen verteilungen von $CH_4$ und $H_2$ im Keservolr
Appliquing	33. $\Pi_2$ -ronzentration vs. Eindningtiere des $\Pi_2$ in die Deckschichten

Abbildung	34: Kern der Bohrung BA C1 Nullprobe (links) und nach der Einlagerung	
	(rechts)	6
Abbildung	35: Fotos der Kerne aus der Bohrung NU Nullprobe (links) und nach der	
	Einlagerung (rechts)5	7
Abbildung	36: Kern BA 1 C1, (links) und Kern NU W8, (rechts); Hellfeld-Durchlicht,	_
	Bildausschnitt: 3,6 mm x 2,4 mm5	3
Abbildung	37: Kern BA 1 C1, Teufe: 1319.14 m, (links: vor Einlagerung, rechts: nach	_
	Einlagerung), gekreuzte Polarisatoren, Bildausschnitt: 3,6 mm x 2,4 mm5	3
Abbildung	38: Kern NU W8, (links: vor Einlagerung, rechts: nach	
	Einlagerung),gekreuzte Polarisatoren, Bildausschnitt: 3,6 mm x 2,4 mm	3
Abbildung	39: Durchströmungsapparat	C
Abbildung	40: Kern BA 1 C1, Teufe: 1312.97 m, (links: vor Einlagerung, rechts: nach	
	Einlagerung für 12 Monate)6	1
Abbildung	41: Kern NU W8 (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung für 12	
	Monate) Nach der Entnahme der Kerne wurden wiederum die Gas und	
	Wasserpermeabilitäten bestimmt	1
Abbildung	42: Mäßig sortierter, feinkörniger, kalzitisch zementierter Litharenit62	2
Abbildung	43: Ubersichtsaufnahme eines porösen, gut sortierten, feinkörnigen	
	Litharenites. Der freie Porenraum ist blaugefärbt63	3
Abbildung	44: Kern BA 1 C1, Teufe: 1310.94 m, (links: vor Einlagerung, rechts: nach	
	Einlagerung für 12 Monate), gekreuzte Polarisatoren; Bildausschnitt: 900 µm x	
	600 μm63	3
Abbildung	45: Kern NU W8, (links: vor Einlagerung, rechts: nach Einlagerung für 12	
	Monate),gekreuzte Polarisatoren; Bildausschnitt: 900 µm x 600 µm64	4
Abbildung	46: H <sub>2</sub> -Sensitivität60	6
Abbildung	47: Numerische Fehler6	7
Abbildung	48: Pyrit-Sensitivität6	7
Abbildung	49: Pyrit-Sensitivität II68	8
Abbildung	50: Grenzwert H <sub>2</sub> (g)6	8
Abbildung	51: Grenzwert H <sub>2</sub> (g) ohne Calcit und Dolomit69	9
Abbildung	52: pH-Wert als Funktion der zugefügten Stoffmenge $H_2(g)$ , ohne Calcit/Dolomit	
	im Gestein69	9
Abbildung	53: Vorgeschlagener geochemischer Modellierungs-workflow, wie im Text	
	beschrieben	1
Abbildung	54: Entwicklung des pH-Werts statischen Gleichgewichtsmodel als Funktion	
	der injizierten Wasserstofffugazität72	2
Abbildung	55: Änderung der Mineralzusammensetzung während eines Injektionsjahres	
	mit einem H <sub>2</sub> -Partialdruck von 7.5 bar (Grundlegendes kinetisches Model	
	basierend auf dem anfänglichen System von Fallstudie 3 und unter der	
	Annahme das Reaktionen von Pyrit und Pyrrhotit im Gleichgewicht sind)72	2
Abbildung	56: Veränderung des pH-Werts (Grundlegendes kinetisches Model basierend	
	auf dem anfänglichen System von Fallstudie 3 und unter der Annahme das	
	Reaktionen von Pyrit und Pyrrhotit im Gleichgewicht sind)73	3
Abbildung	57: Schema Abbildung 58: Reaktorkopf mit Armaturen	9
Abbildung	59: Isolierte Hochdruck-Bioreaktoren	9
Abbildung	60: Lagerstättenwasser Abbildung 61: Bohrkern80	С
Abbildung	62: Primerpaar V4	1
Abbildung	63: Befüllung der Hochdruck-Bioreaktoren Quelle: BOKU Wien82	2

Abbildung 64: Gasprobenentnahme Quelle: BOKU Wien
Abbildung 65: Öffnung eines Reaktors
Abbildung 66: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den Reaktoren 1 und 4: 4 %
H <sub>2</sub> , 0,3 % CO <sub>2</sub> in Methan
Abbildung 67: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den Reaktoren 1 und 4: 10
% $H_2$ , 0,3 % $CO_2$ in Methan, erneute Befüllung am Tag 10990
Abbildung 68: Verfärbung des äußeren Rands eines Bohrkerns bei Öffnung der
Reaktoren
Abbildung 69: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den Reaktoren 2 und 5: 10
% H <sub>2</sub> , 0,3 % CO <sub>2</sub> in Methan Quelle: BOKU92
Abbildung 70: Konzentrationsverlauf der Gaskomponenten in den abiotischen Reaktoren
7 und 8: 10 % H <sub>2</sub> , 2,5 % CO <sub>2</sub> in Methan93
Abbildung 71: Mikrobielle Konsortien in Reaktoren (Start vs. Ende Wasserstoffexposition)
und Formationswasser (Testfeld). Darstellung auf Phylum-Ebene
Abbildung 72: Versuchsaufbau für SSRTs, a) Zugprüfeinrichtung mit Glaszelle für die
SSRTs bei 1 bar, b) Zugprüfeinrichtung mit Autoclav für die SSRTs bei 12 bar.98
Abbildung 73: Versuchsaufbau für CLTs bei 1 bar
Abbildung 74: Versuchsaufbau für Auslagerungstests bei 1 bar
Abbildung 75: Arithmetische Mittelwerte der Bruchdehnungen des Werkstoffs L80102
Abbildung 76: Arithmetische Mittelwerte der Bruchdehnungen des Werkstoffes P110103
Abbildung 77: Bruchdehnungen der Werkstoffe 42CrMo4 QT, 42CrMo4 QTT, L360 und
P235104
Abbildung 78: Einbindung und Funktion einer Wasserstofftrennanlage an einem
Porenspeicher
Abbildung 79: Relative Permeanzen für Wasserstoff und Kohlenwasserstoffe eines
glasartigen Polymers (Polyimide)114
Abbildung 80: Konzentrationsverläufe im Retentatstrom und im Permeatstrom der
Wasserstofftrennanlage während eines Ausspeicherungsvorgangs
Abbildung 81: experimentelle Membrananlage zur Trennung von Wasserstoff/Erdgas-
Gemischen im Forschungsprojekt Underground Sun Storage
Abbildung 82: Trennparameter der Anlage in einem Wasserstoffausgleichsbetrieb117
Abbildung 83: Trennparameter der Anlage in einem Wasserstofftrennbetrieb117
Abbildung 84: Schematische Anlagenübersicht – Hauptanlagen (Quelle: RAG)120
Abbildung 85: Verlauf der Wasserstoffkonzentration über den Speicherstand122
Abbildung 86: Verlauf der Kohlendioxid Konzentration über den Speicherstand123
Abbildung 87: Vergleichender Verlauf der Temperatur während des Feldversuches und in
der Vorbereitungsphase124
Abbildung 88: Abfüllung des Lagerstättenwassers (Quelle: BOKU Wien (RAG)126
Abbildung 89: Probennehmer vor Einfahrt in die Schleuse (Quelle: BOKU Wien (RAG)126
Abbildung 90: Verschiebungen des mikrobiellen Konsortiums im Formationswasser des
Testfeldes. Darstellung auf Phylum-Ebene (Quelle: BOKU)
Abbildung 91: Vergleich des Anteils an vorhandenen (DNA) und aktiven (RNA)
Methanogenen am mikrobiellen Konsortium im Formationswasser des
Testfeldes (Quelle: BOKU)129
Abbildung 92: Verlauf von pH Wert, Chlorid, Sulfat und Acetat im Formationswasser des
Testfeldes (Quelle: BOKU)131
Abbildung 93: Strukturkarte des HP3 1A im geologischen Model133

Abbildung 94: Aktualisierter History Match für den Fall Gasgemisch mit 10 Vol% H <sub>2</sub> und
den Fall reines Erdgas bis 27. Februar 2017
Abbildung 95: Verlauf der Wasserstoffkonzentration im Tubing mit Vergleich der
jeweiligen End- bzw. Anfangskonzentrationen
Abbildung 96: Vorgehensweise des PtG RA (Tucovic, N. 2017)
Abbildung 97: Fließbild zur Systemgrenze des USS Projekts (vgl. Sledz, 2017 und
Tschiggerl et al. 2017)140
Abbildung 98: Vereinfachte Darstellung des Testbeds mit den jeweiligen Beschriftungen
der identifizierten Risiken (Tucovic, N. 2017)141
Abbildung 99: FN Kurve (schwarz=Durchschnitt; gestrichelt rot = 3Sigma) von der RAG
PtG Anlage (Tucovic, N. 2017)145
Abbildung 100: Spider Diagramm von den Oberfläche OEs, bewertet nach den
Konsequenzen (Tucovic, N. 2017)146
Abbildung 101: Spider Diagramm von den Untertage OEs bewertet nach den
Konsequenzen (Tucovic, N. 2017)147
Abbildung 102: Fließbild Anwendungsfeld 1b (vgl. Sledz, 2017 und Tschiggerl et al. 2017)149
Abbildung 103: Modellierung Anwendungsfeld 1b (Sledz, 2017)150
Abbildung 104: Auszug Umweltprofil Anwendungsfeld 1b (vgl. Sledz, 2017 und Tschiggerl
et al., 2017)150
Abbildung 105: Potential der jährlichen H2-Einspeisung in das österreichische Erdgasnetz.163
Abbildung 106: Mögliche installierte Gesamtleistung von Power-to-Gas Anlagen und
speicherbarer Strom für die unterschiedlichen $H_2$ -Einspeiskapazitäten in das
österreichische Erdgasnetz für aktuelle und zukünftige Rahmenbedingungen. 165
Abbildung 107: Überblick zu den Gestehungskosten der einzelnen Anwendungsfelder166
Abbildung 108: Zusammensetzung der spezifischen Gestehungskosten von Wasserstoff
und Methan aus einer Power-to-Gas Anlage mit einer Nennleistung von 5
MWel bei 6000 h/a168
Abbildung 109: Sensitivität der Gestehungskosten von $H_2$ und $CH_4$ aus Power-to-Gas168
Abbildung 110: Underground Sun Conversion – Ein nachhaltiger Kohlenstoffkreislauf
(Quelle: RAG)182

## Projektleitung und Gesamtkoordination:

DI Stephan Bauer Rohöl-Aufsuchungs Aktiengesellschaft Schwarzenbergplatz 16, 1015 Wien www.rag-austria.at; www.underground-sun-storage.at

## **Projektpartner:**

Axiom angewandte Prozeßtechnik Ges.m.b.H. Wienerstraße 114, 2483 Ebreichsdorf www.axiom.at

Verbund AG Am Hof 6a, 1010 Wien www.verbund.com

Montanuniversität Leoben Lehrstuhl für Verfahrenstechnik des industriellen Umweltschutzes Franz-Josef Straße 18, 8700 Leoben www.unileoben.ac.at

Universität für Bodenkultur Wien Department für Agrarbiotechnologie Tulln Konrad Lorenz Straße 20, 3430 Tulln Gregor Mendel Straße 33, 1180 Wien www.boku.ac.at

Energieinstitut an der Johannes Kepler Universität Linz Altenberger Straße 69, 4040 Linz www.energieinstitut-linz.at