J. Kulenkampff, J. R. Schopper

Zusammenfassung

Elektrische Leitfähigkeitsmessungen spielen in der Geophysik eine wichtige Rolle, ihre Interpretation bereitet jedoch oft Schwierigkeiten. Grundlegend hierzu ist die Kenntnis der elektrischen Eigenschaften wassergesättigter Gesteinsproben. Ihre Leitfähigkeit ist frequenzabhängig und nicht phasenrein, so daß mit komplexen Größen gerechnet werden muß. Sie besitzt im Frequenzbereich von 10 - 10° Hz einen Realteil, der mit der Frequenz zunimmt und einen kapazitiven Imaginärteil, der mit zunehmender Leitfähigkeit der Porenflüssigkeit zunimmt. Dies sind die Ergebnisse komplexer Leitfähigkeitsmessungen, die an einigen Sandsteinen und Graniten durchgeführt wurden. Eine Erklärung ergibt sich, wenn man die Gleichung für den Formationsfaktor in komplexer Form betrachtet und dabei die Grenzflächenleitfähigkeit berücksichtigt, die schon bei sehr reinem Porenwasser vorhanden ist und durch die elektrische Doppelschicht an der inneren Gesteinsoberfläche entsteht. Dabei wird deutlich, daß dieser Grenzflächenanteil für das Verhalten der komplexen Leitfähigkeit die entscheidende Rolle spielt.

Anschrift der Autoren: Institut für Geophysik der TU Clausthal, Arnold-Sommerfeld-Str. 1, 3392 Clausthal-Zellerfeld

Die elektrische Gesteinsleitfähigkeit spielt zur petrophysikalischen Charakterisierung von Gesteinen und bei elektrischen Bohrlochmessungen eine wichtige Rolle. Zu ihrem besseren Verständnis ist es sinnvoll, sie möglichst vollständig zu kennen, das heißt als komplexe frequenzabhängige Größe. Es ist weiterhin nützlich, ihre Abhängigkeit von der Porenfüllung zu untersuchen, bei uns handelt es sich um Kochsalzlösung unterschiedlicher Konzentration, denn dann wird die Unterscheidung von Volumen- und Grenzflächeneffekten möglich. In unseren Untersuchungen hat sich nun gezeigt, daß die komplexe Gesteinsleitfähigkeit verglichen mit der Admittanz von Netzwerken passiver elektronischer Bauelemente sich ungewöhnlich verhält. Dieses Verhalten, daß durch eine Cole-Cole-Gleichung beschrieben werden kann, wurde aber vielfach an anderen Materialien beobachtet. Hierfür bietet sich neuerdings eine Erklärung an, die auf der fraktalen Geometrie der Grenzflächen beruht.

Der Gang der Untersuchungen war folgender: Einige Sediment- und Granitproben, die so ausgesucht wurden, daß sie möglichst unterschiedliche petrophysikalische Eigenschaften besitzen, wurden unter Vakuum mit NaCl- Lösungen mit Konzentrationen von 0 bis 100000 ppm NaCl gesättigt. In einer Spannungsteilerschaltung wurde mit Hilfe hochohmiger kapazitätsarmer Tastköpfe das Spannungsverhältnis und die Phasenverschiebung gegenüber einem Vergleichswiderstand gemessen (Abb. 1). Unter Berücksichtigung der Eingangskapazität der Tastköpfe läßt sich daraus die Admittanz der Proben bestimmen.

Eine übersichtliche Darstellung der Admittanz und der Impedanz erlaubt die Gaußsche Zahlenebene. Die Frequenzabhängigkeit ist zwar nur implizit enthalten, dafür wird die gegenseitige Abhängigkeit von Real- und Imaginärteil deutlich. Bei der Sandsteinprobe (Abb. 2) sieht man im Admittanzbild, daß bei Frequenzen zwischen etwa 1 kHz und 1 MHz der Verlauf ein linearer ist. Entsprechend erhält man im Impedanzbild einen Kreisbogen. Im einfachsten Fall wäre das zugehörige Ersatzschaltbild die Parallelschaltung eines ohmschen Leitwerts mit einer Kapazität. Dieses Bild würde stimmen, wenn die Admittanzgerade senkrecht wäre. Sehr deutlich wird aber bei der Granitprobe (Abb. 3), daß dies nicht der Fall ist. Die Steigung dieser Geraden ist ungefär 2. Das Koordinatensystem erscheint um den Steigungswinkel gedreht. Entsprechend ergibt sich im Impedanzbild ein flacherer Kreisbogen mit dem Mittelpunkt oberhalb der x- Achse (Abb 4). Für ein solches Verhalten gibt es kein einfaches Ersatzschaltbild, es wurde aber bei der dielektrischen Relaxation vieler Stoffe beobachtet und läßt sich durch eine Cole- Cole- Gleichung beschreiben (C.J.F.Böttcher, P.Bordewijk 1978; A.K.Jonscher 1981)

$$Z(\omega) = R_{o} + \frac{Z_{o}}{1 + (i\omega\tau)^{\alpha}} \quad 0 < \alpha < 1$$

Im niederfrequenten Bereich treten Abweichungen auf, die sich aber









mit einem ähnlichen Relaxationsmechanismus beschreiben lassen und die auf fraktale Elektroden zurückgeführt werden können (S.H.Liu 1985).

Ein wesentlicher Gegenstand unserer Untersuchungen ist die Abhängigkeit der komplexen Gesteinsleitfähigkeit von der Leitfähigkeit des Elektrolyten im Porenraum. Dabei wird nämlich die Trennung von Grenzflächen- und Volumeneffekten möglich. Es soll hier wieder die Admittanz der Granitprobe (Abb. 5) in der komplexen Zahlenebene betrachtet werden. Sie ist hier dargestellt für Salinitäten von 100 bis 10000 ppm NaCl. Man erkennt eine leichte Zunahme des Imaginärteils mit ansteigender Salinität. Außerdem wird die Steigung der Geraden etwas geringer. Bei der Sandsteinprobe sieht das so ähnlich aus (Abb. 6), insgesamt ist die Steigung größer und die konzentrationsabhängigen Änderungen sind geringer.

Sehr gut bekannt ist das Verhalten der Gesteinsleitfähigkeit bei Frequenzen von einigen kHz. Dort wird ein sehr kleiner Imaginärteil gemessen und der Zusammenhang zwischen Elektrolytund Gesteinsleitfähigkeit kann durch eine reelle Gleichung korrekt beschrieben werden:

$$\kappa_{0} = \frac{1}{F} \cdot \kappa_{w} + \kappa_{q}$$

F ist der Formationswiderstandsfaktor, eine Geometriegröße. Die konstante Grenzflächenleitfähigkeit ^Kq entsteht aufgrund der elektrischen Doppelschicht an der Grenzfläche Flüssigkeit-Gesteinsmatrix (M.Rink, J.R.Schopper 1974). Es sei bemerkt, daß diese elektrische Doppelschicht für das elektrische Verhalten der Gesteine allgemein eine wichtige Rolle spielt. Zur Berück-





sichtigung der Frequenzabhängigkeit und der Phasenverschiebungen bei höheren Frequenzen müssen komplexe Größen angesetzt werden:

$$\kappa_{o}^{*} = \kappa_{o}^{\prime} + i \cdot \kappa_{o}^{\prime} = \frac{1}{F} \cdot \kappa_{w}^{*} + \kappa_{q}^{*}$$

Der Term $1/F^{*} \times_{W}^{*}$ beschreibt den Anteil des Elektrolytvolumens an der Probenleitfähigkeit. Der imaginäre Anteil durch die dielektrische Polarisation des Elektrolyten ist bei Frequenzen bis 1 MHz zu vernachlässigen. Außerdem zeigen die Messungen, daß der Imaginärteil der Probenleitfähigkeit nicht der Elektrolytleitfähigkeit proportional ist. Folglich stellt der erste Term das Produkt reeler Größen dar. Der zweite Term, der die Wechselwirkung mit der Gesteinsmatrix beschreibt, ist für den Imaginärteil somit entscheidend, und es ergibt sich im betrachteten Frequenzbereich:

$$\kappa_{o}^{*}(\omega) = \frac{1}{F'} \cdot \kappa_{w}' + \kappa_{q}'(\omega) + i \cdot \kappa_{q}''(\omega)$$

Die große Bedeutung des Grenzflächenterms zeigen auch die Bilder von der Frequenzabhängigkeit des Imaginärteils. Es ergeben sich Geraden, deren Steigung einer Kapazität entspricht. Bei der Granitprobe (Abb. 7) nimmt die Steigung mit der Salinität zu. Dies ist bei der Sandsteinprobe (Abb. 8) in geringerem Maße ebenso der Fall. Ein solches. Verhalten läßt sich keinesfalls mit einem Volumeneffekt erklären, denn mit steigender Salinität nimmt die Dielektrizitätszahl einer Lösung ab und so auch ihre Kapazität (G.Kortüm 1970). Eine Erklärung ist möglich, wenn die elektrische Doppelschicht betrachtet wird. Von ihr ist bekannt, daß sie mit steigender Salinität starrer und dünner wird, sie nähert sich der Helmholtz- Doppelschicht an. Die stark vereinfachte Modellvorstellung der Doppelschichtdicke als Plattenabstand eines Kondensators zeigt, daß die Kapazität mit ansteigender Salinität zunehmen muß.





Nicht nur die Salinitätsabhängigkeit der Kapazität, sondern auch die Neigung der Admittanzgeraden kann durch Vorgänge an den Grenzflächen im Innern der Gesteine erklärt werden. Diese Grenzflächen sind fraktale Gebilde mit einer Dimension größer als 2. Zur Zeit werden Theorien entwickelt, die Transportvorgänge in solchen Medien mit Hilfe selbstähnlicher Geometrien beschreiben (A.Le Mehaute, G.Crepy 1983; L.A.Dissado, R.M.Hill 1987). Solche geometrischen Randbedingungen für den Ladungstransport führen zum beobachteten Cole- Cole- Verhalten. Die Theorie besagt nun, daß die fraktale Dimension der Grenzflächen dem Kehrwert der Steigung der Admittanzgeraden proportional ist. Dies dürfte die Erklärung für die deutliche Abhängigkeit zwischen dem Kehrwert dieser Steigung und der auf das Porenvolumen bezogenen inneren Oberfläche sein, die mit der am höchsten auflösenden Methode mittels Stickstoffadsorption (BET) gemessen wurde (Abb. 9).

Abschließend kann man feststellen, daß auch hier, wie bei vielen anderen petrophysikalischen Größen, nicht die Gesteinsmatrix oder der Porenraum allein, sondern auch ihre Wechselwirkung über die innere Oberfläche zur Erklärung der physikalischen Vorgänge wesentlich ist. In diesem Fall spielt sowohl die Geometrie der inneren Oberfläche als auch die an ihr gebildete elektrische Doppelschicht die Schlüsselrolle zur Erklärung der komplexen Leitfähigkeit elektrolytgesättigter Gesteine.



- 117 -

Literatur:

C.J.F. Böttcher, P. Bordewijk, Theory of Electric Polarization

Amsterdam 1978

L.A. Dissado, R.M.Hill, Solid State Ionics 22(1987)

A.K. Jonscher, J. Mat. Sc. 16(1981)

G. Kortüm, Lehrbuch der Elektrochemie, Weinheim 1970

S.H. Liu, Phys. Rev. Let. 55, 5, 1985

A.Le Mehaute, G. Crepy, Solid State Ionics 9&10(1983)

M. Rink, J.R. Schopper, RILEM-IUPAC Final Report II, C311(1973)