



Doctoral Thesis

Numerical simulations of the hydrodynamics and thermodynamics of NaCl-H₂O fluids

Author(s):

Geiger Boschung, Sebastian

Publication Date:

2004

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-004794506> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS ETH Nr. 15554

Numerical Simulations of the Hydrodynamics and Thermodynamics of NaCl-H₂O Fluids

A dissertation submitted to the

SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH

For the degree of

Doctor of Natural Sciences

Presented by

Sebastian Geiger Boschung
M. Sc., Oregon State University, U.S.A
Born March 30, 1974
Citizen of Germany

Accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Christoph A. Heinrich, examiner
Dr. Thomas Driesner, co-examiner
Dr. Stephan K. Matthäi, co-examiner
Prof. Dr. Grant Garven, co-examiner

2004

Abstract

Many important geological processes in the Earth's crust are related to the simultaneous, often buoyancy driven, movement of heat and dissolved salt in water-rich crustal fluids. These processes encompass the formation of large metallic ore deposits by magmatic fluids below volcanoes, the cooling of new-formed oceanic crust along mid-ocean ridges, convection in sedimentary basins, or heat transported by fluid flow in geothermal systems.

The hydrodynamic and thermodynamic behavior of NaCl-H₂O fluids in permeable rocks is fundamentally different from that of pure H₂O. During thermohaline convection, so-called double-diffusive and double-convective flow patterns can evolve, because heat diffuses at a higher rate than salt while salt is advected at a faster rate than heat. NaCl-H₂O fluids can also separate into a high-density, high-salinity liquid phase and low-density, low-salinity vapor phase at pressures and temperatures well above the critical point of pure H₂O (374°C, 221 bar). This process is particularly common in magmatic hydrothermal systems and likely a key driver for the formation of the world's major ore deposits of Cu, Mo, Au and other important metals.

The objective of this thesis is to simulate, using numerical methods, the general behavior of water, heat, and salt transported in the Earth's crust across a wide range of pressure and temperature conditions that exist between the surface and water-bearing magmas reaching the upper crust. Thermohaline convection has been studied intensely in numerical and physical experiments assuming that the fluid is incompressible, its viscosity is constant, fluid density acts only on the gravity term, and can be described by a linear dependency on temperature and pressure. Two-phase thermally driven convection has been investigated numerically and experimentally for pure H₂O fluids. Thermohaline convection of NaCl-H₂O fluids including the full complexity of high-temperature, high-pressure phase separation, however, has never been studied.

To study thermohaline convection for geologically realistic pressure, temperature, and compositional ranges, a new higher-order accurate implicit finite-element – explicit finite-volume algorithm has been developed. This algorithm is first applied to model incompressible two-phase flow to test its suitability to accurately resolve geometrically complex structures and orders of magnitude variations in permeability. The algorithm has then been extended to simulate compressible heat and solute transport in two fluid phases with greatly varying fluid properties. A new equation of state for the NaCl-H₂O system, developed by Thomas Driesner at the ETH Zürich in a concurrent part of this thesis, is employed to calculate thermodynamic fluid properties and phase state as a function of pressure, temperature, and salinity. A series of benchmarking tests are used to verify that

the algorithm can accurately solve the various component processes of multiphase thermohaline convection. For these and geometrically more complex geological applications, the algorithm is implemented in a series of libraries in the object-oriented C++ code 'Complex System Platform' CSP, being developed by the ETH Zürich's Fluid and Ore Deposits group in collaboration with Stephan Matthäi's research group at Imperial College, London.

In a parametric study, thermohaline convection in a square domain of 4 by 4 kilometers is simulated for a variety of temperature and salinity input ranges. This study has identified five general flow patterns, ranging from single-phase diffusive to multiphase convective flow patterns including the physical separation of variably saline liquid and vapor phases and local saturation of halite. The type of heat and mass transport cannot be characterized quantitatively without transient model calculations by using the classical dimension parameters (i.e., Rayleigh number, buoyancy ration, normalized porosity, and Lewis number) commonly employed to describe thermohaline convection. These are only valid for idealized physical processes that are not likely encountered in geological systems, because fluid properties vary nonlinearly with pressure, temperature, and salinity, and are not readily defined at two-phase conditions. Instead, the evolution of the fluid dynamics is examined and parameterized using the local Rayleigh number and fluxibility term, which explain well the onset of convection and conditions where heat and salt transport are maximized. The geological implication is that transport of salt, and probably of many ore-forming metals, is maximized at single-phase conditions, whereas important fractionation processes including mineral precipitation are expected to be most effective near the transition between single and two-phase flow. Furthermore, the thermodynamic explanation for the maximum temperatures of fluid ejected from seafloor black-smokers, which was derived for pure H₂O, is still valid for NaCl-H₂O fluids and suggests that the hottest black-smoker fluids occur where the magma chamber is shallow but the seafloor depth is large.

In a second application, the algorithm is employed to simulate heat and salt transport in a continental magmatic hydrothermal system above a magma chamber at 800°C and 5 kilometers depth. In these simulations, a saline fluid is assumed to exsolve at ~ 720°C from the intrusion. For the hydrodynamic conditions assumed in this series of modeling scenarios, magmatic fluid exsolves directly as a brine plus vapor mixture. The low-salinity vapor rises quickly, condensing into cold surface waters. The brine, however, is immobile for large pressure and temperature ranges. Key to the formation of large magmatic hydrothermal deposits is more likely the transition from lithostatic pressure at depth to hydrostatic conditions higher up, allowing initial exsolution of a saline single-phase magmatic fluid. As previously shown, a single-phase fluid can maximize transport of salt and chloride-complexed metals. Phase separation of such a single-phase fluid would occur where lithostatic pressures decrease rapidly to hydrostatic levels. Phase separation then leads to selective metal and volatile enrichment in brine and vapor. Herein, solutes that partition into the vapor phase are transported upwards in high concentration, possibly forming shallow epithermal ore deposits, whereas solutes that partition into the brine phase are likely accumulated locally due to the relative immobility of the brine.

Zusammenfassung

Die Zirkulation von Wärme und Salz in wasserreichen Lösungen in der Erdkruste beeinflusst viele geologische Prozesse. Zu diesen gehören die Bildung von grossen metallischen Erzlagerstätten in magmatisch-hydrothermalen Systemen, das Abkühlen von neugebildeter ozeanischer Kruste entlang mittelozeanischer Rücken durch Meerwasserzirkulation, Konvektion saliner Lösungen in sedimentären Becken, oder der Wärmetransport in geothermalen Systemen.

Saline Lösungen unterscheiden sich grundlegend in ihrer Hydrodynamik und Thermodynamik von reinem Wasser. Sogenannte doppel-diffusive, doppel-advective Fließbewegungen entstehen während der Konvektion von Wärme und Salz, da Wärme schneller diffundiert als Salz, sich aber durch Advektion langsamer ausbreitet. NaCl-reiches Wasser kann zudem bei Temperatur- und Druckbedingungen, die deutlich über dem kritischen Punkt von reinem Wasser (374°C, 221 bar) liegen, in eine dichte, sehr salzhaltige, flüssige Phase und eine weniger dichte, weniger salzhaltige, dampfförmige Phase entmischen. Dieser Entmischungsprozess ist wahrscheinlich einer der Hauptfaktoren, der zu der Bildung der grössten Cu-Mo-Au-Erzlagerstätten führt.

Das Ziel der vorgelegten Arbeit ist, mittels numerischer Verfahren das generelle Verhalten von Wärme- und Salztransport in der Erdkruste für Druck- und Temperaturbereiche zu studieren, die zwischen der Erdoberfläche und wasserreichem Magma in der oberen Erdkruste vorkommen können. Konvektion von Wärme und Salz ist in vielen numerischen und experimentellen Studien untersucht worden, meist unter der Annahme, dass das Fluid nicht kompressibel ist, eine konstante Viskosität hat, sowie dass die Dichte des Fluides nur auf den Gravitationsterm Einfluss nimmt und durch einfache lineare Beziehungen beschrieben werden kann. Das Fließen einer dampfförmigen und flüssigen Phase in reinem Wasser ist ebenfalls bereits numerisch und experimentell untersucht wurden. Konvektion von Wärme und Salz, welche die Komplexität der Entmischung einer salzigen Lösungen in eine hochsaline flüssige und weniger saline dampfförmige Phase beinhaltet, wurde jedoch noch nie untersucht.

In dieser Arbeit wurde deshalb ein neuartiges numerisches Verfahren entwickelt, das auf einer impliziten Finiten Element Methode und einer hochauflösenden, expliziten Finiten Volumen Methode basiert. Mit Hilfe dieses Verfahrens kann die Konvektion von Salz und Wärme für die in der Erdkruste stark variierenden Drücke, Temperaturen und Salzgehalte modelliert werden. Zuerst wurde dieses Verfahren zur Simulation leicht kompressibler Mehrphasenströmungen verwendet, um zu testen wie gut geometrische komplexe geologische Strukturen aufgelöst werden können. Der Algorithmus wurde dann so erweitert, dass

die Simulation von kompressiblem Wärme- und Stofftransport in zwei Fluidphasen mit deutlich variierenden Eigenschaften möglich ist. Dazu wurde eine neue Zustandsgleichung für das NaCl-H₂O System verwendet, welche zeitgleich von Thomas Driesner an der ETH Zürich entwickelt wurde. Diese erlaubt, die thermodynamischen Eigenschaften einer salzreichen Lösung für gegebenen Druck, Salzgehalt und gegebene Temperatur zu berechnen. In mehreren vergleichenden Simulationen wurde verifiziert, dass das Lösungsverfahren die verschiedenen Teilprozesse von Mehrphasenströmungen, Wärme- und Salztransport richtig berechnet. Das Lösungsverfahren wurde in die objekt-orientierte C++ Bibliothek 'Complex System Platform' CSP eingebettet, einem Gemeinschaftsprojekt der Arbeitsgruppen von Christoph Heinrich, ETH Zürich, und Stephan Matthäi, Imperial College London.

In einer ersten Studie wurde die Konvektion von Salz und Wärme in einem rechteckigen Modell von vier mal vier Kilometern bei diversen Temperaturen und Salzgehalten simuliert, um die Entwicklung der entstehenden Fliessprozesse zu studieren. Die Ergebnisse zeigen, dass fünf generelle Fliessprozesse möglich sind. Sie reichen von der Diffusion einer einzigen flüssigen Phase bis zu Mehrphasen-Konvektion von Salz und Wärme mit transients Entmischung in eine salzhaltige flüssige und salzarme dampfförmige Phase. Die verschiedenen Wärme- und Salztransportprozesse können jedoch nicht mittels der klassischen Parameter (Rayleigh-Zahl, Auftriebs-Zahl, Lewis-Zahl und normalisierte Porosität) quantifiziert werden, da diese nur unter idealisierten Bedingungen anwendbar sind, welche wahrscheinlich nur selten in der Erdkruste anzutreffen sind. Ferner variieren diese Parameter nicht linear als Funktion von Druck, Temperatur, und Salzgehalt und sind nicht per se definiert wenn zwei Phasen vorhanden sind. Deswegen werden die Fliessprozesse mit der lokalen Rayleigh-Zahl und dem Fluxibilität-Parameter quantifiziert, da diese das Einsetzen von Konvektion und die Optimierung von Wärme- und Salztransport gut beschreiben. Für geologische Prozesse implizieren die Simulationsergebnisse, dass der Transport von Salz und gelösten Stoffen, die Erzminerale ausfällen, am effizientesten ist wenn sich die Lösung nicht in eine flüssige und eine dampfförmige Phase entmischt hat. Wichtige chemische Fraktionierungsprozesse, welche auch die Ausfällung von Erzmineralen beinhalten, sind jedoch am Übergang von Einphasen- zu Zweiphasenströmungen am effektivsten. Des Weiteren zeigt sich, dass die thermodynamische Erklärung der maximal möglichen Temperaturen einer Lösung, die an den sogenannten 'black smokers' eines ozeanischen hydrothermalen Systems austritt, auch für salzhaltige Lösungen seine Gültigkeit hat. Ursprünglich wurde diese für reines Wasser berechnet. Es ist anzunehmen, dass die Temperaturen eines black smokers dann am heissesten sind, wenn dessen Magmenkammer relativ flach ist, das Meer selbst aber sehr tief ist.

In einer zweiten Anwendung wurde das Fliessen von Salz und Wärme in einem kontinentalen hydrothermalen System um eine sich abkühlende magmatische Intrusion untersucht. Diese befindet sich in 5 Kilometern Tiefe und ist 800°C heiss. In den Simulationen wird ferner angenommen, dass die Intrusion während ihrer Kristallisation ein magmatisches salzhaltiges Fluid von ~ 720°C entmischt. Für die angenommenen hydrodynamischen Bedingungen zeigen die Ergebnisse, dass dieses Fluid stets als ein Gemisch einer salzigen, flüssigen und eher salzarmen, dampfförmigen Phase produziert wird. Während die Dampfphase schnell aufsteigt und in kalte Oberflächenwässer kondensiert, ist die flüs-

sige Phase über grosse Druck und Temperaturbereiche relativ immobil. So ist der Übergang von lithostatischem Druck in der Tiefe zu hydrostatischen Bedingungen in flacheren Bereichen wahrscheinlich einer der wichtigsten Faktoren für die Bildung von magmatisch-hydrothermalen Erzlagerstätten, da dies verhindert, dass sich das magmatische Fluid als flüssige und dampfförmige Phase entmischt. Wie die vorangegangenen Untersuchungen zeigten, ist der Transport von Salz und anderen gelösten Partikeln am effizientesten, wenn die Lösung sich nicht entmischt hat. Ein solches magmatisches Fluid würde sich dann entmischen, wenn der Druck über eine kurze Distanz von lithostatisch zu hydrostatisch abnimmt. Das Entmischen bewirkt dabei die selektive Anreicherung von Metallen und Gasen in den beiden Phasen. Dabei werden die Metalle, die in die dampfförmige Phase partitionieren, mit dieser in hoher Konzentration schnell nach oben abgeführt, was eventuell die Bildung epithermaler Lagerstätten zur Folge hat. Metalle, die in die flüssige Phase partitionieren, reichern sich wahrscheinlich lokal an, da diese weitgehend immobil ist.