

Evaluation and modelling of the response of gas hydrate reservoirs to changing environmental conditions across a high-latitude continental margin

Mestdagh Thomas

Universiteit Gent, Faculteit Wetenschappen, Krijgslaan 281 S8, 9000 Gent, Belgium
E-mail: Thomas.Mestdagh@UGent.be

Gashydraten zijn kristallijne vaste stoffen die opgebouwd zijn uit een rooster van watermoleculen waarin een gasmolecule (CO_2 , CH_4 of een molecule van een zwaarder gas) gevangen zit. Ze komen voor in de natuur in de poriënruimte van sedimenten bij voldoende hoge druk en lage temperatuur (Sloan and Koh, 2007). Concreet betekent dit dat gashydraten (in de literatuur ook wel clathraten genoemd) veelal teruggevonden worden in mariene sedimenten op en aan de voet van continentale randen, bij oceaانبodemdieptes van 300 m tot 3000 m (Birchwood et al., 2010). Daarnaast komen ze voor in associatie met permafrost, die in poolnabije regio's zowel op het land als onder ondiepe zeeën kan voorkomen (Collett et al., 2011). Tenslotte zijn ook een aantal voorbeelden uit het Baikalmeer en de Zwarte Zee gekend (Khlystov et al., 2013).

Hoewel er wat onenigheid over bestaat, is de omvang van het globale gashydraatreservoir met een geschat volume van enkele honderden tot duizenden gigaton aan koolstof aanzienlijk. Deze waarde is op zijn minst in dezelfde grootteorde als de geschatte reserves aan andere conventionele koolstofbronnen zoals steenkool, aardolie of aardgas (Koh et al., 2012). Het is dan ook niet verwonderlijk dat een aanzienlijk deel van het hydraatonderzoek zich tot op de dag van vandaag toespit op het potentieel van gashydraten als toekomstige energiebron.

Deze scriptie behandelt echter een andere, maar niet minder onderzochte problematiek. Al snel groeide immers het besef dat gashydraten mogelijk een belangrijke rol kunnen spelen in de koolstofcyclus en bijgevolg in het klimaat van de Aarde (Kvenvolden, 1988). Het basisidee hierachter is dat het gas (hoofdzakelijk methaan), dat initieel gevangen zit in de clathraatstructuur, kan vrijkomen door het smelten of dissociëren van gashydraten. In de natuur kan dit bijvoorbeeld het gevolg zijn van een stijging van de temperatuur aan de zeebodem, door een opwarming van de bovenliggende watermassa's, die vervolgens in de ondergrond propageert naar dieptes waar gashydraten voorkomen, of van een zeespiegeldaling waardoor de druk in de oceaانبodemsedimenten daalt. Wanneer methaan (CH_4) en zijn oxidatieproduct koolstofdioxide (CO_2), beide broeikasgassen, door de sediment- en waterkolom migreren en uiteindelijk als vrij gas in de atmosfeer terecht komen, kunnen deze nog extra bijdragen tot de opwarming, waardoor het smelten van de gashydraten in stand gehouden of versneld wordt. Op deze manier wordt een positief feedback-mechanisme gecreëerd, dat abrupte stijgingen in atmosferische CH_4 of CO_2 concentraties en snelle klimaatschommelingen zou kunnen verklaren.

Dergelijke snelle klimaatschommelingen hebben zich verschillende keren voorgedaan in de geologische geschiedenis, en werden aan het licht gebracht door metingen van koolstof- en zuurstofisotopen. Een bekend voorbeeld, waarvoor dit mechanisme voorgesteld werd, is het *Paleocene - Eocene Thermal Maximum*, afgekort PETM (Dickens et al., 1995). Andere studies opperen dat het afwisselend krimpen en aangroeien van het globale gashydraatreservoir ook een belangrijke rol kan gespeeld hebben in Laat-Pleistocene klimaatschommelingen (Loehle, 1993; Nisbet, 1990). Een bijkomende factor hierbij is dat de faseovergang van gashydraat naar vrij gas en vloeistof gepaard gaat met een volume-expansie, waardoor in weinig permeabele sedimenten de druk in de poriënruimte aanzienlijk kan stijgen. De hieraan gekoppelde daling in de sterkte van het sediment kan uiteindelijk aanleiding geven tot het barsten en afglijden van omvangrijke sedimentpakketten, waardoor grote volumes gashydraten in een korte tijdsspanne zouden kunnen smelten.

Dit vormt de basis voor de *clathrate gun hypothesis*, die Kennett et al. (2003) voorstellen om Laat-Pleistocene klimaatcycliciteiten (glacialen/interglacialen en stadialen/interstadialen) te verklaren. Tenslotte veronderstelt een aantal onderzoekers ook nog dat de hedendaagse klimaatverandering, ten gevolge van menselijke activiteit zoals het massaal verbranden van fossiele brandstoffen, aanleiding kan geven tot het smelten van gashydraten in de komende eeuwen (Hunter et al., 2013; Marín-Moreno et al., 2013), of dat dit zelfs vandaag de dag al aan de gang is op de continentale rand ten westen van Spitsbergen (Westbrook et al., 2009), wat uiteraard een bijkomstig versterkend effect zou kunnen hebben op de opwarming van de Aarde.

Deze scriptie spitst zich toe op de hierboven toegelichte potentiële, maar ook controversiële rol van gashydraten in de koolstofcyclus en het klimaat van de Aarde. De gevoeligheid van gashydraatreservoirs voor veranderende omgevingsparameters is essentiële informatie om de hierboven opgesomde theorieën te kunnen beoordelen. Dit houdt in dat vragen als waar, hoe snel en hoeveel gashydraten kunnen smelten ten gevolge van temperatuur- en/of zeespiegel-schommelingen, dienen te worden beantwoord. Deze studie probeert dit te doen voor methaanhydraatreservoirs langsheen een hypothetische continentale rand op een hoge breedtegraad, omdat klimaatveranderingen hier over het algemeen het meest uitgesproken zijn (Westbrook et al., 2009). Dit laat bovendien ook toe om vier fundamenteel verschillende omgevingen waarin hydraten kunnen voorkomen (continentale permafrost, permafrost onder ondiepe zeeën, in de zeebodem bovenaan de continentale helling, en in de zeebodem aan de voet van de continentale helling) te beoordelen en te vergelijken. Hiertoe werd een eendimensionaal numeriek model ontwikkeld in MATLAB, waarbij de evolutie van de temperatuur in de ondergrond doorheen de tijd gebaseerd is op de *finite difference method*. Realistische initiële distributies en concentraties van gashydraten in de ondergrond werden verkregen door het implementeren van bestaande vormingsmodellen (het model van Xu and Ruppel (1999) voor mariene gashydraten, en het model van Behseresht and Bryant (2012) voor hydraten geassocieerd met permafrost). Op deze manier kon ook een onderscheid gemaakt worden tussen de gashydraatstabiliteitszone (HSZ), die op basis van druk, temperatuur, en saliniteit van het poriënwater in de ondergrond kan afgebakend worden, en de zone waar gashydraten effectief voorkomen. De omvang van laatstgenoemde zone hangt nog extra af van de beschikbaarheid van methaan in de poriënruimte van de sedimenten, die groot genoeg moet zijn om ervoor te zorgen dat methaanhydraten kunnen vormen en niet oplossen (de methaanconcentratie in het poriënwater moet hiertoe groter zijn dan de oplosbaarheid van methaan in het poriënwater). In veel gevallen beslaat het volume van deze zone (en dus van de gashydraatreservoirs) slechts een fractie van de HSZ. Daarnaast dient men ook rekening te houden met de *sulphate reduction zone* in de bovenste meters van de zeebodem, waarbinnen sulfaatreducerende bacteriën methaan omzetten naar CO₂ en op deze manier de stabiliteit van methaanhydraten belemmeren. Desalniettemin nemen een aantal modelleerstudies het volume van de HSZ (verkeerdelijk) als referentie voor de omvang van gashydraatreservoirs, wat in deze studie dus vermeden werd. Voorts werd ook de consumptie van latente warmte tijdens het smelten van gashydraten in rekening gebracht.

Dit model maakt het mogelijk de respons van methaanhydraatreservoirs op temperatuurstijgingen en zeespiegelschommelingen te simuleren. In eerste instantie werd dit gedaan voor drie scenario's waarin eenzelfde verandering wordt opgelegd in elk van de vier omgevingen, met als doel te achterhalen waar methaanhydraten het meest gevoelig zijn voor wijzigingen in de omgevingsparameters. De resultaten van deze simulaties tonen aan dat methaanhydraatreservoirs in associatie met permafrost onder ondiepe zeeën en in sedimenten bovenaan de continentale helling het snelst dissociëren wanneer de temperatuur aan de zeebodem met 5 °C stijgt. Op deze locaties dissocieert het volledige hydraatreservoir respectievelijk binnen 70000 en 50000 jaar. Deze tijdsspanne wordt in beide gevallen met ongeveer 30000 jaar verlengd wanneer een simultane zeespiegelstijging van 100 m in rekening wordt gebracht, aangezien de hiermee gepaarde stijging van de hydrostatische druk in de poriënruimte een stabiliserend effect heeft op de gashydraten. Verder van belang voor deze hydraatreservoirs is de observatie dat, wanneer de nieuwe, verhoogde temperatuur aan de zeebodem de smelttemperatuur van methaanhydraat bij de druk aan de zeebodem overschrijdt, hydraten vanaf de top van het reservoir kunnen smelten. Dit staat in contrast met diepwaterhydraten, die over het algemeen vanaf de basis smelten, zoals ook aangegeven wordt door deze studie. Wanneer de temperatuur over de continentale rand uniform toeneemt, zal bovengenoemde voorwaarde alleen vervuld zijn wanneer de waterdiepte kleiner is dan een welbepaalde kritische diepte, waarvoor een vergelijking werd afgeleid. Dit is immers belangrijke informatie, omdat methaangas dat vrijkomt aan de top van de hydraatzone op locaties waar bovendien de bovenliggende oceaan vrij ondiep is, een grotere kans heeft om uiteindelijk in de atmosfeer terecht te komen. Ook wanneer louter een zeespiegeldaling gesimuleerd wordt, neemt het effect op de stabiliteit van methaanhydraten toe naarmate de waterdiepte afneemt. Gashydraten in sedimenten aan de voet van de continentale hellingen en in associatie met dikke, continentale permafrost zijn daarentegen duidelijk minder gevoelig voor opwarming of zeespiegelschommelingen, aangezien over een periode van 100000 jaar slechts een kleine fractie of zelfs helemaal geen hydraten dissociëren. Tenslotte geeft de simulatie van de temperatuurstijging ook nog aan dat ijs in permafrost smelt op een tijdschaal van tientallen duizenden jaren. Hierover bestaat echter een grotere mate van onzekerheid dan over de tijdschaal die werd afgeleid voor het dissociëren van gashydraten, aangezien een aantal basisveronderstellingen over permafrostbodems (o.a. omtrent de grootte van de fractie van de poriënruimte die ijs initieel inneemt) nogal moeilijk te bepalen zijn.

In het tweede deel van deze studie werd de respons van methaanhydraatreservoirs op de klimaatveranderingen tijdens de deglaciatie volgend op het *Last Glacial Maximum* (LGM), tijdens het PETM, en tijdens de huidige opwarming van de Aarde expliciet nagebootst, om de theorieën die

hieromtrent geformuleerd zijn te kunnen evalueren. Elk van deze simulaties toont aan dat de tijdschaal voor het destabiliseren van gashydraten ook in deze specifieke gevallen tientallen duizenden jaren bedraagt. Dit komt niet overeen met de responstijd van duizenden jaren, zoals vooropgesteld in de *hydrate dissociation hypothesis* voor het PETM (Dickens et al., 1995), en de *clathrate gun hypothesis* voor Laat-Pleistocene klimaatschommelingen (Kennett et al., 2003). Dit contrast is zelfs nog groter met de voorgestelde tijdsintervallen van enkele eeuwen (Hunter et al., 2013), of zelfs decennia (Westbrook et al., 2009), voor het dissociëren van gashydraten als een gevolg van de hedendaagse klimaatverandering. Deze studie toont aan dat deze snelle tijdschalen enkel van toepassing kunnen zijn op methaanhidraten die zich heel ondiep (i.e. enkele meters tot tientallen meters) in de ondergrond bevinden. Echter, gashydraten op dergelijke kleine dieptes zijn waarschijnlijk eerder uitzondering dan regel. De zogenaamde 'stratigrafische' hydraatreservoirs, die lateraal continu zijn en het overgrote deel van het globaal volume aan gashydraten bevatten, bevinden zich immers doorgaans op tientallen tot honderden meters diepte. Enkel waar een zeer hoge aanvoer van methaangas ervoor zorgt dat de vorming van hydraten de anaerobe oxidatie van methaan door sulfaatreducerende bacteriën en de diffusie van methaan uit de hydraatstabiliteitszone naar de bovenliggende oceaan overschrijdt, kunnen hydraten vlak onder, of zelfs tot op de zeebodem bestaan. Aan deze voorwaarde kan over het algemeen enkel zeer lokaal voldaan worden, bijvoorbeeld ter hoogte van breuken of moddervulkanen, en zijn dus eerder uitzonderlijk (Archer et al., 2009a). Bovendien vormt de oceaan nog een extra buffer tussen de atmosfeer en de hydraatreservoirs in de geosfeer, omdat het eventuele vrijgekomen methaangas ook hier oplost in het oceaanwater en verder geoxideerd kan worden tot CO₂. De volumes volatiel CH₄ die vanuit methaanhyaatreservoirs snel naar de atmosfeer getransfereerd kunnen worden zijn dus waarschijnlijk te klein om significante schommelingen in atmosferische broeikasgasconcentraties en het klimaat teweeg te kunnen brengen.

De algemene conclusie is dat, van de vier fundamenteel verschillende settings langsheen een (Ant)Arctische continentale rand die in deze studie geëvalueerd werden, de stabiliteit van methaanhidraten in associatie met offshore permafrost en in sedimenten bovenaan de continentale helling het gevoeligst is voor veranderingen in temperatuur en druk. Niettemin geeft het model aan dat de tijdschaal voor het dissociëren van gashydraten lang is (tienduizenden jaren), en dat deze voor continentale permafrost of diepwater hydraatreservoirs zelfs nog een grootteorde groter is (honderdduizenden jaren). Het grootste deel van het globale gashydratenreservoir is dus niet gevoelig voor smelten op tijdschalen van tientallen, honderden of duizenden jaren. Hierdoor is het onwaarschijnlijk dat een positief feedback-effect ontstaat dat snel een significante toename van methaan in de atmosfeer en dus een bijkomende opwarming kan veroorzaken. Verder blijkt dat de tijdschalen waarop variaties in atmosferische broeikasgasconcentraties en klimaatschommelingen doorheen de geologische geschiedenis hebben plaatsgevonden, sneller zijn dan de tijdschaal waarop het volume van het globale gashydraatreservoir kan slinken en terug aangroeien. Dit impliceert dat gashydraatreservoirs doorgaans in een onstabiele, vergankelijke toestand moeten zijn, ook vandaag. Voortdurend smelten hydraten of worden er hydraten gevormd, maar dit gebeurt traag, en waarschijnlijk niet (zoals in talrijke studies wordt gepostuleerd) als een directe en dynamische weerspiegeling van veranderingen in het klimaat, die zich doorgaans tien tot honderd keer zo snel manifesteren.