



OFFRE D'ALLOCATION DE THESE / PhD GRANT

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES EXACTES ET LEURS
APPLICATIONS - ED 211 / NATURAL SCIENCES DOCTORAL SCHOOL
Avenue de l'université BP 1155 64 013 PAU Cedex – France

SUJET DE THESE / PhD SUBJECT

TITRE / TITLE:

**Dissolution convective du CO₂ dans la saumure dans les aquifères salins profonds /
Convective dissolution of CO₂ into brine in deep saline aquifers**

RESUME :

Le réchauffement climatique est l'une des préoccupations majeures de l'humanité et de nombreux scientifiques alertent sur la nécessité de prendre des mesures ici et maintenant pour limiter les émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Un effort mondial est mis en place, mais les solutions doivent être validées et améliorées. Le programme de capture, utilisation et stockage du carbone (CCUS) est l'une des solutions viables pour réduire la concentration du CO₂ dans l'atmosphère. Le stockage du CO₂ dans différentes conditions est une action prometteuse et un gros effort est consacré pour prévoir ses multiples effets. Différents mécanismes de piégeage du CO₂ contribuent au stockage global du CO₂ dans un réservoir en fonction du temps. La rapidité et l'efficacité de ces mécanismes sont encore mal comprises, et ce projet abordera principalement l'impact de la convection sur la solubilité du CO₂ dans les aquifères, qui pourrait être beaucoup plus rapide que prévu en raison des instabilités hydrodynamiques qui ont lieu. Dans ce projet on abordera le processus convectif impliqué dans la dissolution du CO₂ dans la saumure dans le cas des aquifères profonds pour améliorer l'efficacité et à la sécurité du stockage. Le projet impliquera des activités expérimentales où le CO₂ dans différentes conditions (gaz et supercritique) sera superposé à de l'eau salée et le processus convectif résultant sera étudié au moyen de techniques optiques. L'étude systématique servira à identifier les paramètres clés de la dissolution du CO₂ dans des conditions 3D réalistes à haute pression. Les expériences seront réalisées à la fois dans des milieux libres et dans des milieux poreux modèles afin de comparer les différents modèles de flux.

ABSTRACT:

Global warming is one of the major concerns of humankind and many scientists are alerting the need of actions to be taken here and now to limit the greenhouse gas emissions to the atmosphere. A worldwide effort is put in place, but solutions need to be validated and improved. The program Carbon Capture, Utilization and Storage (CCUS) is one of the viable solutions for reducing CO₂ concentration in the atmosphere. CO₂ storage in different conditions is a promising action and a big effort is devoted to foresee its multiple effects. Various CO₂ trapping mechanisms contribute to the overall CO₂ storage in a generic reservoir as a function of time. How fast and efficient these mechanisms are, is still poorly understood, and this project will address mainly the impact of convection on the solubility of CO₂ in brines, which could be much faster than anticipated due to the concurring hydrodynamic instabilities. This project will be focused on the convective process involved in the dissolution of CO₂ in brine in the case of deep aquifers in order to enhance storage efficiency and safety. The project will involve experimental activities where CO₂ in different conditions (gas and supercritical) will be superposed to salted water and the resulting convective process will be studied by means of optical techniques. The systematic study will serve to identify the key parameters of the CO₂ dissolution in realistic high pressure, 3D conditions. Experiments will be performed both in free and in model porous media in order to compare the different flow models.

Mots clés (Keywords): CO₂, saumures, convection, dissolution / CO₂, brine, convection, dissolution

CONDITIONS D'EXERCICE / WORKING CONDITIONS

Laboratoire : Laboratoire des Fluides Complexes et leurs Réservoirs

Site web : <https://lfc.univ-pau.fr/fr/index.html>

Directeur de thèse (PhD Director): Fabrizio Croccolo, PhD-HDR (fabrizio.croccolo@univ-pau.fr)

Co-Directeur de thèse (PhD co-Director): Henri Bataller, PhD (henri.bataller@univ-pau.fr)

En collaboration avec (In Collaboration with – if any) : Anne de Wit (Université de Bruxelles - BE), Alberto Vailati (Università degli Studi di Milano - IT)

Lieu (Place) : LFCR Anglet (FR)

Date début (start): October 2018

Durée (duration): 3 ans (years)

Employeur (employer): Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA)

Salaire mensuel brut (monthly salary before taxes): 1883 €

SAVOIR-FAIRE DU LABORATOIRE / HOST LABORATORY PROFILE

en français

LFCR : Du nanomètre à la centaine de kilomètre, de la nanoseconde au million d'années, de la physico-chimie des interfaces à la géologie des réservoirs en passant par la thermodynamique des fluides sous pression, la géomécanique et la géophysique, un statut d'UMR « industrielle » avec l'entreprise TOTAL comme tutelle en plus du CNRS et de l'UPPA, le LFCR est une unité de recherche originale et remarquable à bien des égards. Son positionnement singulier, principalement autour de l'étude des géo ressources fossiles et totalement en phase avec l'environnement socio-économique local, lui donne une coloration très marquée par les applications et lui permet d'avoir des équipes reconnues à l'international.

in English

LFCR: From the nanometer to hundreds of kilometers, from the nanosecond to a million years, from the physics and chemistry of interfaces, through the thermodynamics of fluids under flow, to reservoir geology, geomechanics and geophysics, status as an "industrial" UMR (Joint Research Unit), supervised by TOTAL, the CNRS and the UPPA, the LFCR is an innovative and remarkable research unit in more than one way. Its specific focus, essentially based on the study of fossil georesources, and totally in phase with the local socio-economical context, sets it apart regarding applications and enables it to host internationally-recognized teams.

MISSION - ACTIVITES PRINCIPALES / MISSION – PRINCIPAL ACTIVITIES

I. Le contexte scientifique/Scientific Context

en français

Divers mécanismes contribuent au stockage global du CO₂ dans un réservoir générique en fonction du temps. Le piégeage par capillarité sous la roche de couverture domine pendant la première décade suivant la fin de l'injection. Son importance diminue progressivement au profit d'autres mécanismes plus sûrs: le stockage du CO₂ en tant que phase résiduelle lorsque l'eau réimbibe le réservoir; par dissolution dans l'aquifère sous-jacent; et par réaction avec ou comme minéraux. La rapidité et l'efficacité de ces derniers mécanismes sont encore mal comprises, et ce projet tentera d'aborder ces questions principalement pour le piégeage par solubilité, qui pourrait être beaucoup plus rapide que prévu grâce aux instabilités hydrodynamiques et des effets thermiques. Ce sujet est au cœur du projet de Chaire CO₂ES et s'inscrit dans le périmètre du projet E2S (Energy and Environment Solutions) de

l'Université de Pau et des Pays de l'Adour.

in English

Many mechanisms contribute to the global storage of CO₂ in a generic reservoir as a function of time. The trapping of CO₂ by capillarity under the cover rock dominates during the first decade after the end of the injection. Its importance gradually diminishes in favor of other safer storage mechanisms: the storage of CO₂ as a residual phase when the water re-imbibes the reservoir; by dissolution in the underlying aquifer; and by reaction with or as minerals. The speed and effectiveness of these latter mechanisms are still poorly understood, and this project will attempt to address these issues primarily for solubility trapping, which could be much faster than expected due to the occurring hydrodynamic instabilities and thermal effects. This subject is at the heart of the CO₂ES Chair project and falls within the scope of the E2S project (Energy and Environment Solutions) of the Université de Pau et des Pays de l'Adour.

II. Les objectifs Objectives

en français

Lorsque du CO₂ supercritique (s-CO₂) est injecté dans un aquifère, une couche de s-CO₂ se forme rapidement au-dessus de l'eau salée, au moyen des forces de flottabilité. L'interface nette entre les deux couches induit une forte diffusion moléculaire formant rapidement une couche de mélange CO₂/saumure. Étant donné que cette couche est généralement plus dense que la saumure elle-même, la convection peut être initiée par des fluctuations de densité, fournissant ainsi une vitesse de dissolution accélérée. Tous les phénomènes décrits se produisent naturellement dans les roches hôtes, c'est-à-dire dans un matériau poreux. Différents paramètres peuvent influencer la vitesse de ces phénomènes, notamment la composition du fluide d'accueil, la pression d'injection, la phase des composants, les conditions thermodynamiques, les réactions chimiques entre le CO₂ et les sels dissous, la présence d'un gradient de température, et la structure et la composition du milieu poreux. La convection dans les milieux poreux a été largement étudiée, en particulier dans les problèmes environnementaux liés au transport des contaminants dans les milieux géologiques. Lorsque des liquides de salinité et de température différente se rencontrent, le phénomène de la digitation se produit à l'interface des deux couches liquides. Les études expérimentales des effets de la convection sur la dissolution du CO₂ dans de véritables conditions de réservoir (haute pression, s-CO₂, 3D) sont rares, compte tenu de la difficulté de reproduire les conditions du réservoir en laboratoire. Les dispositifs PVT existants permettent essentiellement de mesurer les taux de dissolution, mais ne permettent pas d'observer les phénomènes physiques qui se produisent. Une configuration à haute pression permet de visualiser, par des techniques optiques, la dissolution du CO₂ à travers une interface libre. Par exemple, les cellules de Hele-Shaw permettent de visualiser des écoulements 2D dans un milieu poreux. Notre dispositif expérimental de shadowgraphie a été utilisé pour mesurer les propriétés thermodynamiques des fluides complexes dans les conditions spécifiques de non-équilibre rencontrées dans les réservoirs profonds. Il peut être également utilisé pour visualiser la convection dans la direction parallèle à la gravité dans des couches de fluide réellement 3D avec la possibilité d'injecter des fluides supplémentaires dans différentes conditions. Avec ce dispositif nous avons déjà réalisé une étude de l'impact de l'inclinaison de la couche fluide sur la convection.

in English

When supercritical CO₂ (s-CO₂) is injected into an aquifer, a layer of s-CO₂ is rapidly formed over the salt water by means of buoyancy forces. The interface between the two layers induces a strong molecular diffusion rapidly forming a layer of CO₂ / brine mixture. Since this layer is generally denser than the brine itself, convection can be initiated by density fluctuations, thereby providing an accelerated dissolution rate. All the phenomena described occur naturally in the host rock, i.e. in a porous material. Different parameters can influence the speed of these phenomena, in particular the

composition of the host fluid, the injection pressure, the phase of the components, the thermodynamic conditions, the chemical reactions between CO₂ and the dissolved salts, the presence of a gradient temperature, and the structure and composition of the porous medium. Convection in porous media has been extensively studied, particularly in environmental problems related to the transport of contaminants in geological media. When liquids of different salinity and temperature meet, the 'viscous fingering' phenomenon occurs at the interface of the two liquid layers. Experimental studies of the effects of convection on the dissolution of CO₂ in real reservoir conditions (high pressure, s-CO₂, 3D) are rare, given the difficulty of reproducing these conditions in the laboratory. Existing PVT devices essentially measure dissolution rates, but do not allow observation of the occurring physical phenomena. A high-pressure configuration makes it possible to visualize, by optical techniques, the dissolution of CO₂ through a free interface. For example, Hele-Shaw cells can visualize 2D flows in a porous medium. Our shadowgraph device was used to measure the thermodynamic properties of complex fluids under the specific non-equilibrium conditions encountered in deep reservoirs. It can also be used to visualize convection in the direction parallel to gravity in truly 3D fluid layers with the possibility of injecting additional fluids under different conditions. With this device we have already carried out a study of the impact of the inclination of the fluid layer on convection.

III. Plan de travail *Work plan* *en français*

Dans ce projet expérimental, nous utiliserons notre cellule de shadowgraphie sous pression pour étudier la convection du CO₂ et de la saumure dans différentes conditions. Dans un premier temps, un milieu libre sera étudié en effectuant des expériences d'abord avec du CO₂ gazeux puis du s-CO₂. Dans un deuxième temps, nous effectuerons des expériences incluant des milieux poreux modèles et transparents. La comparaison entre les résultats des deux séries d'expériences permettra une comparaison avec des résultats numériques dans différents environnements théoriques (Navier-Stokes contre Darcy).

in English

In this experimental project we will make use of our Shadowgraph device at high pressure to investigate convection of CO₂ and brine in different conditions. In a first time a free medium will be investigated performing experiments first with gaseous CO₂ and then s-CO₂. In a second time we will perform experiments including model and transparent porous media. The comparison between the results of the two sets of experiments will allow comparison with numerical results in different theoretical environment (Navier-Stokes against Darcy).

IV. Références bibliographiques (*Literature References*)

- F. Croccolo, F. Scheffold and A. Vailati, Phys. Rev. Lett. **111**, 014502 (2013)
- V. Loodts, C. Thomas, L. Rongy and A. De Wit, Phys. Rev. Lett. **113**, 114501 (2014)
- G.P.D. De Silva, P.G. Ranjith, M.S.A. Perera, Fuel **155**, 128 (2015)
- H. Emami-Meybodi, H. Hassanzadeh, C. P. Green, J. Ennis-King, Int. J. Greenh. Gas Control **40**, 238 (2015)
- F. Croccolo, H. Bataller, F. Scheffold, J. Chem. Phys. **137**, 234202 (2012)
- C. Giraudet, H. Bataller, F. Croccolo, Eur. Phys. J. E **37**, 107 (2014)

COMPETENCES REQUISES / REQUIRED COMPETENCES

en français

Le candidat doit être titulaire d'un master ou diplôme équivalent spécialisé en sciences physiques avec de solides bases en mécanique des fluides, etc. Des compétences en techniques optiques et/ou traitement d'images seront un plus. La maîtrise de l'anglais et de bonnes capacités de rédaction sont requises.

in English

The candidate must hold a master or equivalent degree with majors in physics with a strong background in fluid mechanics etc. Experiences with optical techniques and/or image analysis will be a plus. Good knowledge in English and good writing skills are required.

CRITÈRES D'ÉVALUATION DE LA CANDIDATURE / CRITERIA USED TO SELECT CANDIDATE

Processus de sélection (Selection process steps):

- Constitution d'un Jury de sélection. (Establishment of the selection committee.)
- Sélection des candidats sur dossier de candidature. (evaluation of the applicants cv's)
- Audition des candidats et classement. (Interview with the selected candidates and ranking.)

Critères d'évaluation de la candidature (Criteria used in selection of the candidate):

- La motivation, la maturité scientifique et la curiosité du candidat. (The candidate's motivation, scientific maturity and curiosity.)
- Ses connaissances en physique. (candidate knowledge in chemistry).
- Ses notes et son classement en M1 et en M2. (candidate marks and rankings in M1 and M2.)
- Maîtrise de l'anglais. (English proficiency)

CONSTITUTION DU DOSSIER DE CANDIDATURE, DATE LIMITE DE DEPOT / REQUIRED DOSSIER, DATE

Envoyer par email un dossier de candidature comprenant (send an e-mail with your candidature containing):

- CV (CV)
- lettre de motivation (cover letter detailing candidate's motivations)
- relevé de notes et classements en Master (candidate's MSc marks and ranking)
- lettres de recommandation (any letters of recommendation)
- coordonnées des personnes du milieu professionnel (minimum two) à contacter (contact details for 2 referees)

DATE LIMITE DE DEPOT DU DOSSIER (limiting date):

8/07/2018

CONTACTS

e-mail : fabrizio.croccolo@univ-pau.fr