

Avis de Soutenance

Monsieur Meysam GOLMOHAMMADI

Sciences de l'Univers

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Stockage du CO₂ en zone non saturée : effets de la capillarité, de la teneur et de la distribution de l'eau, et de l'évolution de la structure poreuse

Travaux dirigés par Monsieur Lionel MERCURY

Ecole doctorale : Energie, Matériaux, Sciences de la Terre et de l'Univers - EMSTU

Unité de recherche : ISTO - Institut des Sciences de la Terre d'Orléans

Soutenance prévue le **jeudi 02 juillet 2026** à 14h30

Lieu : Campus Géosciences, 1A rue de la Férellerie CS 20066, Bâtiment OSUC (Observatoire des Sciences de l'Univers en région Centre), 45071 Orléans

Salle : Amphithéâtre OSUC

Composition du jury proposé

M. Lionel MERCURY	Professeur des universités	Université d'Orléans	Directeur de thèse
Mme Hannelore DERLUYN	Professeure des universités	Université d'Amsterdam	Rapporteuse
M. Nicolas SEIGNEUR	Enseignant-Chercheur	MINES Paris, PSL	Rapporteur
M. Pierpaolo ZUDDAS	Professeur des universités	Sorbonne Université	Examineur
M. Christophe TOURNASSAT	Professeur des universités	Université d'Orléans	Examineur
M. Stéphane GABOREAU	Ingénieur de recherche	BRGM	Co-encadrant de thèse
M. Laurent ANDRÉ	BRGM	Invité	

Mots-clés : Stockage du CO₂, zone non saturée, Effets capillaires, réflectométrie temporelle (TDR), microporosité secondaire, assemblage dypingite-eau

Résumé :

L'atténuation du changement climatique nécessite le développement de solutions de captage et de stockage du carbone (CSC) à grande échelle. Parmi celles-ci, la minéralisation du carbone constitue une voie particulièrement sûre, reposant sur la transformation du CO₂ en carbonates stables. Les résidus miniers et industriels représentent des candidats prometteurs pour un stockage en surface, en raison de leur abondance et de leur réactivité. Ces matériaux se présentent généralement sous forme de milieux poreux non saturés, où les interactions entre gaz, eau et phases minérales, en conditions partiellement saturées, contrôlent fortement le transport, la dissolution et la minéralisation du CO₂. Cependant, les mécanismes clés régissant ces interactions — notamment la capillarité, la redistribution de l'eau induite par l'évaporation et l'évolution de la structure poreuse — restent encore insuffisamment compris à l'échelle de la colonne. Cette thèse vise à développer une compréhension mécanistique du stockage du CO₂ en zone non saturée (ZNS), en étudiant les effets couplés de la capillarité, de la distribution de l'eau et des réactions minérales. Les objectifs sont (i) d'examiner l'influence de la capillarité sur la solubilité des gaz, (ii) d'évaluer la capacité de la réflectométrie dans le domaine temporel (TDR) à détecter la cavitation et les processus géochimiques, (iii) de quantifier l'impact de la teneur en eau et de sa redistribution sur la surface réactive, et (iv) de déterminer comment la morphologie des carbonates secondaires contrôle l'évolution de la structure poreuse et la progression du stockage du CO₂. Pour répondre à ces objectifs, des expériences en colonne contenant de la brucite (Mg(OH)₂) ont été réalisées sous injection contrôlée de gaz, en combinant des mesures in situ (courbes de percée du CO₂, gravimétrie) et des analyses post-mortem (microscopie électronique à balayage – SEM, porosimétrie par intrusion de mercure). L'évaporation prolongée conduit à de très faibles teneurs en eau, où celle-ci est retenue sous forme de poches capillaires. Dans ces conditions, la TDR permet non seulement de suivre la perte d'eau, mais aussi de détecter des signatures spécifiques associées aux réactions géochimiques et à la cavitation. Les expériences réalisées pour différentes teneurs et distributions de l'eau mettent en

évidence le rôle déterminant de ces paramètres sur l'extension des réactions de carbonatation. Les analyses post-mortem par SEM couplée au faisceau d'ions focalisé (FIB) et par diffraction des rayons X (DRX) révèlent la formation de la dypingite comme principal produit de carbonatation. Au-delà d'un certain seuil de teneur en eau, un assemblage dypingite-eau se développe, générant une porosité secondaire de micro- à nano-échelle. Cette nouvelle structure poreuse modifie significativement le comportement du système, en augmentant la rétention d'eau (jusqu'à environ 40 % par rapport aux systèmes sans formation de dypingite) et en favorisant la solubilité ainsi que le piégeage capillaire du CO₂, via des modifications des propriétés thermodynamiques à petite échelle. Dans l'ensemble, ce travail apporte des éléments nouveaux sur les processus physico-chimiques couplés gouvernant le stockage du CO₂ en zone non saturée et propose un cadre d'analyse pour améliorer la conception et la performance des stratégies de stockage à l'échelle pilote et sur le terrain dans des matériaux anthropiques non saturés.

Summary:

Mitigating climate change requires scalable carbon capture and storage (CCS) solutions, among which carbon mineralization offers highly secure pathways by converting CO₂ into stable carbonate minerals. Mine tailings and industrial residues are promising candidates for surficial CO₂ storage due to their abundance and reactivity. These materials typically form unsaturated porous media, where gas, water, and minerals interact under partially saturated conditions that strongly control CO₂ transport, dissolution, and mineralization processes. However, key mechanisms governing these interactions—particularly capillarity, evaporation-driven water redistribution, and pore structure evolution—remain insufficiently understood at the column scale. This thesis aims to develop a mechanistic understanding of CO₂ storage in the unsaturated zone (UZ) by investigating the coupled effects of capillarity, water distribution, and mineral reactions. The objectives are to (i) examine the influence of capillarity on gas solubility, (ii) evaluate the capability of time domain reflectometry (TDR) to monitor cavitation and geochemical processes, (iii) quantify the impact of water content and redistribution on reactive surface area, and (iv) determine how secondary carbonate morphology controls pore structure evolution and CO₂ storage progression. To address these objectives, brucite (Mg(OH)₂)-bearing column experiments were conducted under controlled gas injection, combining in situ measurements (e.g., CO₂ breakthrough and gravimetry) with post-mortem analyses (e.g., scanning electron microscopy (SEM) and mercury intrusion porosimetry). Prolonged evaporation induces very low water contents, where water is retained as capillary pockets. Under these conditions, TDR not only tracks water loss but also captures distinct signals associated with geochemical reactions and cavitation. Experiments performed across a range of water contents and spatial distributions demonstrate a strong control of these parameters on the extent of carbonation reactions. Post-mortem characterization using SEM-FIB (focused ion beam) and X-ray diffraction (XRD) reveals the formation of dypingite as the dominant carbonation product. Above a threshold water content, a dypingite-water assemblage develops, generating secondary micro- to nano-porosity. This newly formed pore structure significantly alters system behavior by enhancing water retention (up to ~40% compared to systems without dypingite formation) and increasing CO₂ solubility and capillary trapping through modifications of pore-water thermodynamics at small scales. Overall, this thesis provides new insights into the coupled physicochemical processes governing CO₂ storage in the UZ and offers a framework for improving the design and performance of pilot- and field-scale storage strategies in anthropogenic unsaturated materials.