

Projet **FiXeI** (Fissuration du sel gemme étudiée par tomographie RX à haute résolution)

La fissuration intergranulaire du sel gemme est-elle une menace pour la sûreté du stockage d'énergie sous forme d'hydrogène en cavité saline ? Observations *operando* par tomographie à rayons X de sel gemme naturel en conditions mécaniques triaxiales représentatives du stockage souterrain et confrontation à la modélisation multi-échelle

Contexte général

Le besoin de stockage par tous les moyens possibles de l'énergie d'origine renouvelable est plus que jamais d'actualité. Le courttermisme de l'énergie nucléaire, qui ne représente qu'environ 10% de la production mondiale d'énergie, est illusoire, et ce d'autant plus que les réserves de minerais fissiles sont finies. Si elle reste actuellement nécessaire, l'énergie nucléaire n'est pas la réponse à long terme. Par ailleurs, les tensions géopolitiques actuelles et la fébrilité des marchés au vu des instabilités qui en découlent montrent la faiblesse de nos économies, très fortement dépendantes des énergies fossiles. Enfin, il n'est plus utile de rappeler que ces dernières sont directement impliquées dans le réchauffement global et le dérèglement climatique, qui déjà menace nos sociétés et exacerbe les tensions géopolitiques. Aussi, la transition vers les abondantes énergies renouvelables, en favorisant leur développement tous azimuts, reste au cœur de tout projet de société et d'avenir.

L'hydrogène vert produit par électrolyse grâce aux énergies renouvelables est un des principaux vecteurs de la transition énergétique. Son stockage en grandes quantités, requis pour compenser le déphasage entre demande et production, étant problématique en surface, le stockage souterrain est devenu un enjeu clé. La roche de sel gemme (halite) est imperméable au gaz, mais très soluble. On peut obtenir par lessivage contrôlé à coûts réduits des cavités souterraines de capacité de l'ordre du Mm^3 , permettant de stocker de l'ordre de la centaine de GWh chacune, c'est-à-dire largement supérieures aux capacités actuelles de stockage par pompage-turbinage dont les perspectives d'extension sont limitées. Utilisé couramment pour le stockage saisonnier de gaz naturel, ce procédé pourrait être étendu à l'hydrogène sous réserve de pouvoir garantir la stabilité et l'étanchéité des ouvrages pour ce nouveau mode d'exploitation, qui implique des cycles d'injection et de retrait plus fréquents et avec une plus grande variabilité. Les chargements thermomécaniques ainsi appliqués à la roche saline hôte, de type fatigue, vont mobiliser les micromécanismes de déformation, d'endommagement et de cicatrisation actifs à l'échelle des grains. Du fait de la nature intrinsèquement visqueuse de ces derniers, fortement dépendante des vitesses de sollicitation, la modification des modes de chargement pourraient remettre en cause leur équilibre qui garantit actuellement la stabilité à long terme des ouvrages de stockage. Une accumulation du dommage pourrait progressivement compromettre l'étanchéité, voire l'intégrité des ouvrages. Il est ainsi indispensable de compléter notre connaissance de ces micromécanismes sous ces nouvelles conditions de sollicitation.

Etat des connaissances

Dans le cadre de projets récents et en cours, nous avons analysé les mécanismes de déformation d'échantillons de sel synthétique de microstructure contrôlée et de taille de grains ($\sim 500 \mu\text{m}$) adaptée aux dispositifs d'essais micromécaniques par compression sous observation par microscopie électronique à balayage, au LMS et sous tomographie par rayons X (RX), au laboratoire Navier et sous le rayonnement du Synchrotron Soleil. L'apparition de microfissures a été observée quasi-systématiquement (Fig. 1 et Fig. 2), que ce soit en conditions de compression uniaxiale (ANR MicroNaSel) ou triaxiale (ANR RockStorHy, et soutiens E4C). Si dans le premier cas la fissuration est prévisible, elle ne l'est *a priori* pas en conditions représentatives d'exploitation des cavités salines profondes, c'est-à-dire sous des pressions de confinement allant jusqu'à 20 MPa (correspondant à c.a. 1000 m de profondeur).

Nos investigations conjointes, mettant en jeu la collaboration entre deux laboratoires de IPP (LMS et Navier) et un laboratoire des Mines de Paris (Géosciences Mines), ont permis de clairement mettre en évidence qu'aux pressions lithostatiques des cavités usuelles (la plupart à moins de 1000 m de profondeur), le fluage du sel gemme qui accompagne les variations d'état de contrainte en relation avec les variations de pression du gaz stocké dans la cavité, s'accompagne toujours de microfissuration intergranulaire.

La cause principale est la très forte anisotropie de la plasticité cristalline du NaCl, qui est liée au glissement de dislocations (défauts cristallographiques linéaires portant un cisaillement élémentaire de la structure cristalline à l'échelle de la maille cristallographique) sur un nombre restreint de systèmes de

glissement cristallographiques (plans et directions de glissement) non équivalents. Cette anisotropie inhérente à la cristallographie du sel gemme résulte de fait en l'impossibilité physique pour l'agrégat de grains de sel d'accommoder une déformation arbitraire par un écoulement viscoplastique sans changement de volume. En d'autres termes, le sel gemme ne peut fluer sans s'endommager en mettant en jeu uniquement la plasticité cristalline, qui est pourtant encore à l'heure actuelle le seul mécanisme de fluage suffisamment bien connu et employé dans les modélisations prédictives de l'évolution des ouvrages de stockage en formation saline.

Nous avons mis en évidence que les incompatibilités plastiques entre grains voisins d'orientations différentes peuvent entraîner la microfissuration intergranulaire. Nous avons pu établir quantitativement que ce mécanisme représente une contribution proportionnelle et continue au processus de déformation globale et s'active ainsi dès les premiers stades de déformation. Il entraîne le développement progressif d'un réseau interconnecté de microfissures à l'échelle du matériau. Cet état n'affecte pas immédiatement la tenue mécanique du sel sous conditions monotones de chargement et ne représente pas une menace à court terme de la stabilité des ouvrages. En revanche, il peut d'une part affecter la perméabilité/perméation du matériau, et ainsi faire peser potentiellement une menace à long terme sur l'étanchéité d'une cavité. D'autre part, la criticité de l'accumulation de ce dommage lors de sollicitations cycliques reste à évaluer.

De plus, la comparaison du comportement mécanique d'échantillons secs et humides indique que la présence de saumure en quantités de l'ordre de 0,05% en poids retarde et réduit considérablement le développement de la microfissuration (Fig. 1 et Fig. 2). Il est connu que dans un matériau aussi soluble que le sel, la présence de saumure permet l'activation de mécanismes physico-chimiques, qui reposent sur la dissolution de matière, son transport diffusif sous forme de solutés à travers le réseau de porosité occupé par la saumure le long des joints de grains, puis sa précipitation. Ces mécanismes, en principe actifs dès les très faibles contraintes déviatoriques et très dépendant du temps (transfert diffusif) sont surtout reconnus pour participer au fluage du sel gemme sur les temps géologiques (ou pour de très petites tailles de grains, comme celles des matériaux synthétiques). Ils sont aussi parfois pris en compte dans la modélisation à l'échelle de vie des cavités salines qui se referment lentement sur elles-mêmes. Nos résultats très récents (ANR RockStorHy) sur matériaux synthétiques, mais aussi sur quelques matériaux naturels inhabituels, de faible taille de grain (< 1 mm), montrent que ces mécanismes pourraient aussi participer au comportement mécanique à court et moyen terme, en tant que mécanisme d'accommodation locale des incompatibilités plastiques (en ajoutant une composante très locale de transfert diffusif et en favorisant par exemple la migration d'interface ou le glissement relatif des grains), ce qui d'une part prévient ou limite la microfissuration intergranulaire, et d'autre part favorise la cicatrization des microfissures déjà générées (phénomènes liés à la tension de surface et à de minimisation d'énergie libre associée). Les interdépendances de ses mécanismes et leur apport au comportement global du matériau ne sont encore que partiellement compris. Surtout, nos observations montrent que leur activité est dépendante de l'historique de compaction du matériau, avec des différences notables entre matériaux synthétiques et naturels. Les questions s'orientent vers la structure fine des interfaces, dont la nature semble différer entre matériaux synthétiques et naturels. De plus, ces mécanismes diffusifs de dissolution-précipitation opèrent à l'échelle des hétérogénéités du champs local de contrainte, c'est-à-dire à celle des grains, induisant une forte dépendance à leur taille moyenne d . Des modèles simples suggèrent une dépendance en d^{-3} , vérifiée par certaines analyses expérimentales, qui induit une contribution très différente dans un sel naturel dont les grains centimétriques sont au moins 10 fois plus gros que ceux des matériaux synthétiques déjà étudiés à l'échelle microstructurale. En d'autres termes, si nos travaux sur matériaux synthétiques « école » ont permis de clairement mettre en évidence les différents mécanismes mis en jeu, la quantification de leur contribution au comportement global ne peut être simplement transposée à leurs homologues naturels.

Nos observations ont une portée très importante. Elles devraient permettre d'élaborer pour le fluage du sel gemme un modèle robuste, basé sur la coopération des mécanismes de plasticité cristalline et de dissolution/précipitation, mais, elles sont encore insuffisantes. Notamment, nous manquons encore d'observations conclusives sur du sel gemme naturel, dont les tailles de grains sont notablement plus grandes et avec des distributions plus hétérogènes (0,1 - 1cm) que celles de nos études antérieures, et dont la nature des joints de grains semble différer de celle des matériaux de synthèse.

Projet

Nous avons ébauché une analyse micromécanique de matériaux naturels représentatifs à gros grains, par microscopie optique sous conditions de compression uniaxiales, ainsi que par tomographie X *post mortem*, à la suite de chargement triaxial. En premier lieu, ces observations montrent que le sel naturel est également sujet à la microfissuration. Il est maintenant crucial d'investiguer *in operando* les effets du confinement, de la saumure et de la vitesse de sollicitation, comme nous l'avons abondamment documenté pour les matériaux synthétiques.

Ce projet vise à quantifier *in operando* le développement de microfissures dans le sel gemme naturel par observation en micro-tomographie RX au cours de chargements mécaniques représentatifs de cavités réelles. Cependant, les tailles représentatives d'échantillons naturels à gros grains (pluri millimétriques à centimétriques) excèdent la capacité des équipements utilisés lors des phases antérieures de notre projet (thèses de N. Du et X. Li). Nous sommes en phase finale de développement, avec le soutien financier de l'ANR (projet RockStorHy) et du DIM MaTeRE et de la Région Ile de France (Projet TomExTer), d'une nouvelle cellule triaxiale adaptée aux tailles d'échantillon requises par ce matériau. Actuellement, nous visons des tailles d'échantillon de diamètre 36 mm (contre 10 mm actuellement) similaires à celles utilisés sous conditions uniaxiales et observation optique par X. Li. D'autres adaptations permettront dans un second temps de s'approcher des tailles usuellement utilisées en laboratoire pour la caractérisation macroscopique des sels naturels (diamètre de 65mm). Ceci nécessite des charges axiales des plusieurs dizaines de kN (contre 10 kN pour la machine utilisée antérieurement). Ce dispositif triaxial permettra également d'atteindre des pressions de confinement de 30 MPa, représentatif de caverne plus profondes, susceptibles d'être moins sujets aux mécanismes de microfissuration.

Ces développements bénéficient du robuste savoir-faire expérimental et analytique des deux partenaires de ce projet, LMS et Navier, mais également du celui de partenaires des Mines de Paris et de l'Ensam, avec lesquels nous avons mené à bien au cours de l'ANR RockStorHy plusieurs thèses en co-encadrement (Nina Di, Xinjie Li, Nour Habib) et projets post-doctoraux (Jubier Alonso Jimenez Camargo). Les équipements dont il s'agit sont modulables et versatiles, pour pouvoir s'adapter aussi bien au tomographe RX de laboratoire (Navier) que sur la ligne Psiché du synchrotron Soleil, mais aussi et surtout sur la nouvelle ligne de lumière BM18 de l'ESRF, sur laquelle travaille une ancienne doctorante financée par E4C et encadrée par les mêmes partenaires. Un projet pour y accéder sera soumis en septembre 2026, afin de bénéficier au plus tôt de ses caractéristiques uniques au monde (énergie jusqu'à 350keV et taille de faisceau jusqu'à 300mm, compatible avec les échantillons envisagés).

Les images 3D acquises lors des séquences de chargement seront exploitées qualitativement et quantitativement en mettant notamment en œuvre les protocoles récemment développés par l'équipe de Navier (Post-doc de J.A. Jimenez Camargo). Basés sur l'apprentissage profond, ces techniques permettront l'extraction du réseau de microfissures, y compris dans les phases précoces où elles sont difficilement visibles. Leur quantification en terme d'extension et d'ouverture locale reposera sur des algorithmes complémentaires développés par ailleurs par Navier (thèses de Y. Chen et plus récemment de E. Delobre, en cours).

De plus Une analyse cristallographique par EBSD sur coupes sériées, réalisées post mortem au LMS, en se basant sur l'expérience acquise sur des échantillon similaires lors de la thèse de X. Li, permettra la reconstruction 3D cristallographique des échantillons. Ces reconstructions permettront le maillage de jumeaux numériques des échantillons testés in operance, sur lesquels seront appliqués les modèles micromécaniques de comportement viscoplastique cristallin couplés au micro-endommagement d'interface, qui ont été très récemment développés par nos partenaires de l'Ensam (thèse de Nour Habib, ANR RockStorHy), et sont maintenant disponibles dans la librairie de calcul Open source MOOSE. La confrontation entre résultats expérimentaux et simulation numérique contribuera à l'amélioration de la formulation de ces comportements et à l'identification de leurs paramètres.

Les candidates et candidats devront avoir un goût prononcé pour l'expérimentation et l'analyse d'images numériques. De solides connaissances en mécanique des matériaux sont souhaitées. Une expérience en essais à haute pression, et/ou mécanique des roches sera appréciée.

Les candidatures devront être envoyées à :

Michel Bornert (michel.bornert@enpc.fr)

Alexandre Dimanov (alexandre.dimanov@polytechnique.edu)

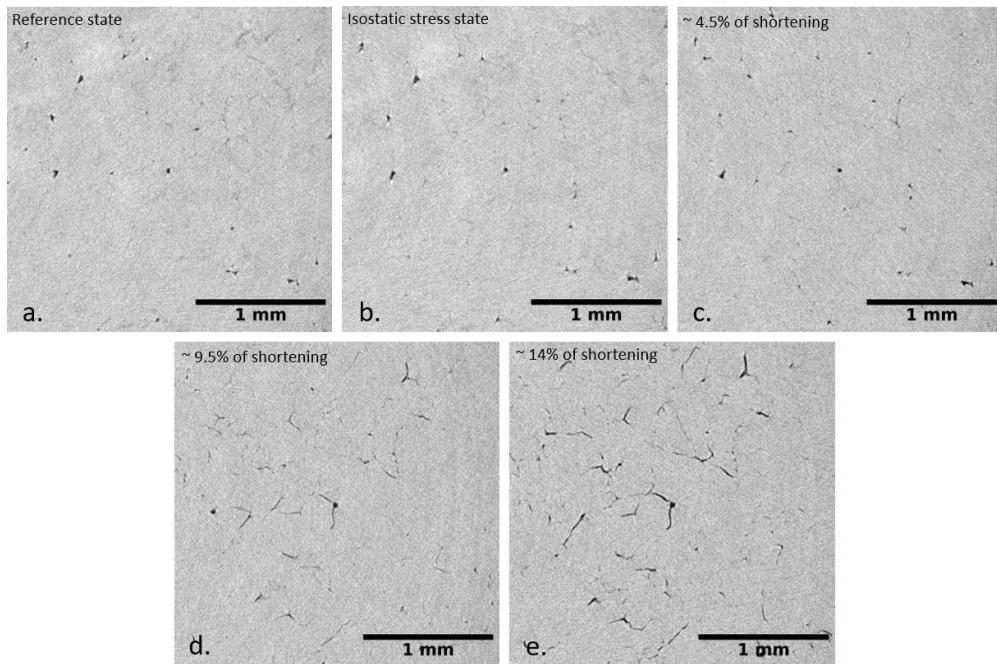


Figure 1: Zone représentative d'une tranche d'échantillon sec reconstruite par micro-tomographie RX, montrée à différents moments au cours du chargement mécanique axial de l'échantillon. Pression de confinement : 10MPa ; vitesse de déformation : 10^{-4} s^{-1} . (a): état de référence ; (b); état sous chargement isostatique. (c), (d), (e): déformation axiale de 4.5%, 9.5%, 9% et 14%, respectivement.

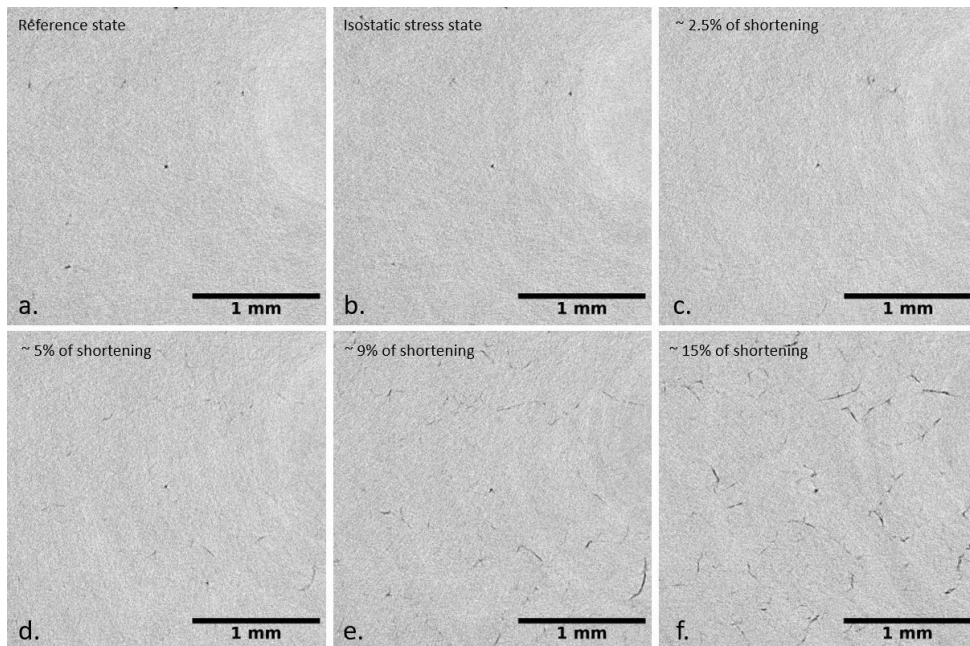


Figure 2: Zone représentative d'une tranche d'échantillon humide reconstruite par micro-tomographie RX, montrée à différents moments au cours du chargement mécanique axial de l'échantillon. Pression de confinement : 10MPa ; vitesse de déformation : 10^{-4} s^{-1} . (a): état de référence ; (b); état sous chargement isostatique. (c), (d), (e), (f): déformations axiale de 2.5%, 5%, 9% et 15%, respectivement.