



**HAL**  
open science

# Influence de l'hydrogène gazeux sur la vitesse de propagation d'une fissure de fatigue dans les métaux : approche expérimentale et modélisation

Giovambattista Bilotta

► **To cite this version:**

Giovambattista Bilotta. Influence de l'hydrogène gazeux sur la vitesse de propagation d'une fissure de fatigue dans les métaux : approche expérimentale et modélisation. Autre. ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2016. Français. NNT : 2016ESMA0002 . tel-01319227

**HAL Id: tel-01319227**

**<https://theses.hal.science/tel-01319227v1>**

Submitted on 20 May 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THESE

Pour l'obtention du Grade de

## DOCTEUR DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DE MECANIQUE ET D'AEROTECHNIQUE

(Diplôme National – Arrêté du 7 août 2006)

*Ecole Doctorale :*

*Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et Aéronautique*

*Secteur de Recherche :*

*Mécanique des solides, des matériaux, des structures et des surfaces*

Présentée par :

**Giovambattista BILOTTA**

\*\*\*\*\*

*Influence de l'hydrogène gazeux sur la vitesse de propagation d'une fissure de  
fatigue dans les métaux : approche expérimentale et modélisation*

\*\*\*\*\*

Directeurs de thèse : Gilbert HENAFF et Damien HALM

Co-encadrante : Mandana ARZAGHI

Soutenue le 18 mars 2016  
devant la Commission d'Examen

### JURY

Xavier Feugas	<i>Professeur à l'Université de La Rochelle, LaSic</i>	Président
Monique Gaspérini	<i>Professeure à l'Université Paris XIII, LSPM</i>	Rapporteur
Stéphane Marie	<i>Docteur HDR, AREVA NP, Paris La Défense</i>	Rapporteur
Francisco Javier Belzunce Varela	<i>Professeur à l'Université d'Oviedo, Espagne</i>	Examinateur
Jader Furtado	<i>Air Liquide R&amp;D, Jouy-en-Josas</i>	Examinateur
Gilbert Hénaff	<i>Professeur à l'ISAE-ENSMA, Poitiers</i>	Examinateur
Damien Halm	<i>Professeur à l'ISAE-ENSMA, Poitiers</i>	Examinateur
Mandana Arzaghi	<i>Maître de Conférences à l'ISAE-ENSMA, Poitiers</i>	Examinateur



## *Remerciements*

Après trois ans et demi passés à l'ENSMA, je me rends compte que je suis arrivé au bout du chemin. Je n'aurais jamais pu réaliser ce travail sans le soutien d'un grand nombre de personnes.

Je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs de thèse, Gilbert, Damien et Mandana, pour leur appui scientifique, mais aussi pour leur soutien et leurs encouragements dans les moments difficiles. Toujours disponibles et à l'écoute, ils m'ont permis d'avancer jour après jour dans ce travail, et de devenir toujours plus autonome. Leurs conseils et leurs qualités humaines ont été précieux pour l'accomplissement de cette thèse.

Je remercie Xavier, Catherine, Juan et Abdelali, du laboratoire LaSIE de l'université de La Rochelle, pour leur disponibilité et leur apport scientifique dans une partie fondamentale de mes travaux.

Je remercie toutes les personnes formidables que j'ai rencontrées à l'ENSMA. En particulier, je veux citer Guillaume et Mikael pour leur contribution, à la fois technique et scientifique, dans l'utilisation des moyens expérimentaux, et dans le développement du modèle numérique.

Je remercie tous les doctorants que j'ai pu rencontrer durant ces trois ans. Ça a été un plaisir de faire votre connaissance, je vous remercie pour les bons moments passés ensemble, et les nombreuses activités que l'ATEM a organisées pour nous. Merci à tous ceux qui ont fait partie de l'ATEM pendant ces trois ans ! En particulier, j'emporterai avec moi un très bon souvenir de tous les membres de mon bureau (Multimat), les anciens et les actuels. Leur sympathie et la bonne ambiance en général dans le bureau m'ont permis de venir travailler chaque jour avec le sourire, et de ne pas désespérer au cours de la rédaction.

Je garderai un bon souvenir de tous les Italiens qui sont passés à l'ENSMA (et de Momo). J'ai trouvé des amis plus que des collègues.

Je voudrais exprimer particulièrement toute mon amitié à Francine. Je voudrais te dire merci pour ton soutien pendant mes périodes de doutes et pour tes multiples encouragements (et pour tes corrections de français). Chaque pause a été un moment de bonheur, tu as toujours eu les bons mots pour me donner confiance en moi, et l'envie de m'améliorer. Et n'oublie jamais, Francine, tu as la chance d'être toi !

Merci à mes parents qui ont été toujours là. Tous les jours de ma vie ils m'ont soutenu, ils ont cru en moi, et ils m'ont donné la possibilité d'étudier dans les meilleures conditions, en toute sérénité et en toute confiance. Si je suis arrivé jusque-là, c'est surtout grâce à eux.

Enfin, je tiens à remercier Tati, une personne spéciale qui a été à mes côtés ces trois ans. Merci pour avoir été là, pour ton soutien et pour les belles paroles que tu as toujours eu pour moi.



# Table des matières

<b>Introduction</b> .....	1
<b>I Etat de l'art</b> .....	5
Chapitre 1 : Fissuration assistée par l'hydrogène .....	7
1.1 Généralités sur la FPH.....	7
1.2 Sources d'hydrogène .....	9
1.3 Mécanismes de diffusion de l'hydrogène.....	10
1.3.1 Dissociation et adsorption.....	10
1.3.2 Absorption.....	12
1.4 Transport de l'hydrogène .....	14
1.4.1 Diffusion interstitielle.....	14
1.4.2 Piégeage .....	15
1.4.3 Equilibre .....	18
1.5 Effet de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration dans les métaux.....	19
1.5.1 Influence de l'hydrogène sur la vitesse de propagation des fissures de fatigue .....	20
1.5.2 Influence de l'hydrogène sur les modes de rupture .....	22
1.6 Mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène.....	23
1.6.1 Hydrogen-Enhanced Decohesion (HEDE).....	24
1.6.2 Hydrogen-Enhanced Localized Plasticity (HELP) .....	25
1.6.3 Adsorption-Induced Dislocation Emission (AIDE) .....	26
1.6.4 Bilan sur les mécanismes de FPH .....	28
<b>II Analyse de la FPH: étude expérimentale de la propagation de fissures de fatigue et de l'interaction hydrogène-plasticité</b> .....	31
Chapitre 2 : Choix du matériau et propriétés mécaniques .....	33
2.1 Matériau d'étude .....	33
2.1.1 Choix du matériau et caractéristiques générales.....	33
2.1.2 Traitement thermique.....	34
2.1.3 Microstructure .....	38
2.2 Essais de traction .....	43
2.2.1 Banc d'essai .....	43

2.2.2 Eprouvettes de traction et de fatigue oligocyclique .....	44
2.2.3 Procédure expérimentale .....	45
2.2.4 Résultats de traction.....	45
<b>Chapitre 3 : Essais de propagation de fissures de fatigue sous haute pression d'hydrogène gazeux.....</b>	<b>49</b>
3.1 Techniques expérimentales .....	49
3.1.1 Procédure (ASTM E647).....	49
3.1.2 Présentation du banc d'essai Hycomat .....	52
3.1.3 Techniques de suivi de fissure.....	55
3.2 Propagation de fissures de fatigue dans le fer pur : courbes de référence.....	57
3.2.1 Propagation de fissures de fatigue sous air ; effets de fermeture .....	57
3.2.2 Propagation de fissures de fatigue sous vide .....	60
3.2.3 Essai sous azote .....	63
3.3 Propagation de fissure sous haute pression d'hydrogène gazeux.....	65
3.3.1 Effet de l'hydrogène sur la propagation d'une fissure de fatigue.....	65
3.3.2 Etude de l'effet de la fréquence de sollicitation cyclique sous haute pression d'hydrogène gazeux.....	68
3.3.3 Influence de la forme du signal de sollicitation cyclique.....	78
3.3.4 Influence de la pression d'hydrogène .....	81
3.4 Bilan sur les effets de l'hydrogène sur les mécanismes d'endommagement.....	85
<b>Chapitre 4 : Analyse de l'interaction hydrogène-plasticité.....</b>	<b>87</b>
4.1 Comportement cyclique.....	87
4.1.1 Procédure expérimentale .....	87
4.1.2 Choix des paramètres des essais de fatigue cyclique en déformation imposée.....	88
4.1.3 Sollicitation cyclique en déformation plastique imposée .....	91
4.1.4 Sollicitation cyclique en contrainte imposée (effet rochet) .....	93
4.2 Observations MET .....	97
4.3 Dosage de l'hydrogène.....	105
4.4 Perméation électrochimique.....	108
4.5 Discussion .....	111

<b>III Amélioration d'un modèle de zone cohésive pour l'étude de la fissuration assistée par l'hydrogène.....</b>	<b>113</b>
Chapitre 5 : Modélisation de la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène.	115
5.1 Modèles de zone cohésive (MZC).....	115
5.1.1 Loi de traction-séparation.....	117
5.1.2 MZC en fatigue .....	119
5.1.3 MZC influencé par l'hydrogène .....	119
5.1.4 Cadre thermodynamique .....	122
5.2 Formulation du modèle .....	123
5.2.1 Développement d'une TSL spécifique dans le cadre thermodynamique .....	123
5.2.2 Implémentation de la TSL dans Abaqus .....	127
5.2.3 Diffusion couplée de l'hydrogène .....	128
5.2.4 Bilan.....	129
5.3 Synthèse des résultats de simulation sur le 15-5PH [1] .....	129
5.3.1 Propagation de fissures sous différents types de chargement.....	131
5.3.2 Propagation de fissures de fatigue assistée par l'hydrogène gazeux .....	134
5.4 Conclusion.....	135
Chapitre 6 : Essais de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux ...	137
6.1 Matériau et méthodes expérimentales .....	137
6.1.1 Caractéristiques générales .....	137
6.1.2 Principes des essais de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène.....	138
6.1.3 Bilan des résultats précédents .....	139
6.2 Etude de la propagation de fissures dans le 15-5PH sous différentes atmosphères.....	141
6.2.1 Propagation de fissures de fatigue dans le 15-5PH : courbes de référence .....	141
6.2.2 Effet de la pression d'hydrogène gazeux sur la propagation d'une fissure de fatigue .....	143
6.2.3 Influence de la fréquence de chargement cyclique sur la propagation d'une fissure de fatigue sous hydrogène .....	146
6.2.4 Propagation de fissure de fatigue sous chargement statique .....	149
6.2.5 Discussion.....	152
6.3 Déformation hors plan.....	155
Bilan .....	162

Chapitre 7 : Evolution du modèle 2D : diffusion de l'hydrogène et propagation de fissures de fatigue .....	165
7.1 Vérification et modifications du modèle.....	165
7.1.1 Géométrie, maillage et influence de la taille de maille.....	166
7.1.2 Etude de la convergence des calculs .....	168
7.1.3 Diffusion de l'hydrogène .....	171
7.2 Simulation de la propagation de fissures de fatigue.....	177
7.2.1 Simulation de la propagation de fissures de fatigue dans un environnement inerte.....	177
7.2.2 Simulation de la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène .....	178
7.2.3 Simulation de la propagation de fissures sous hydrogène sous chargement statique.....	184
7.3 Influence de l'hydrogène sur la plasticité des éléments de bulk.....	187
7.3.1 Effet de l'hydrogène sur la limite d'élasticité du bulk.....	188
7.3.2 Simulation de la déformation hors plan.....	189
7.4 Effet de la contrainte hydrostatique sur la diffusion .....	192
Bilan .....	194
<b>Discussion et conclusion .....</b>	<b>197</b>
1 Objectifs.....	197
2 Discussion et conclusion de l'étude expérimentale.....	198
3 Conclusion sur l'évolution du modèle numérique .....	203
4 Perspectives.....	204
<b>Bibliographie.....</b>	<b>207</b>

# Table des figures

<i>Figure 1 : Classification des différentes sources d'hydrogène dans les métaux [10] .....</i>	<i>2</i>
<i>Figure 1 - 1 : Réduction de ductilité dans un essai de traction réalisé sous 300 bar d'hydrogène par rapport à l'essai réalisé sous azote, pour trois différents métaux [13] .....</i>	<i>8</i>
<i>Figure 1 - 2 : Représentation de la dynamique d'adsorption et désorption, par Hassan [23] .....</i>	<i>11</i>
<i>Figure 1 - 3 : Evolution de l'isotherme de Langmuir en fonction de la valeur du coefficient d'adsorption <math>b(T)</math> .....</i>	<i>12</i>
<i>Figure 1 - 4 : Evolution de la solubilité de l'hydrogène dans le fer alpha en fonction de la pression et de la température, dans le cas d'une enthalpie de dissolution de 28600 J/mol [26].....</i>	<i>13</i>
<i>Figure 1 - 5 : Schématisation des niveaux d'énergie d'activation des sites interstitiels (B) et des sites de piégeage (A) [45].....</i>	<i>16</i>
<i>Figure 1 - 6 : Schématisation des différents sites de piégeage de l'hydrogène, dans les défauts microstructuraux [13].....</i>	<i>16</i>
<i>Figure 1 - 7 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures obtenues sous air et sous 34 MPa d'hydrogène gazeux à différentes fréquences pour l'acier API X70 (a), et comparaison avec les vitesses obtenues sous 5.5 MPa d'hydrogène à la fréquence de 1 Hz pour trois aciers différents (b) [73].....</i>	<i>21</i>
<i>Figure 1 - 8 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures obtenues sous différentes pressions d'hydrogène gazeux (0.09, 0.9 et 9 MPa), et différentes fréquences de chargement cyclique (0.2 et 20 Hz) [69] .....</i>	<i>21</i>
<i>Figure 1 - 9 : Observations MEB des surfaces de fracture : on observe l'évolution d'une fissuration transgranulaire dans la propagation à l'air (a), à une propagation intergranulaire sur l'éprouvette chargée sous 138 MPa d'hydrogène (b).....</i>	<i>22</i>
<i>Figure 1 - 10 : Observations MEB des surfaces de fracture sur le 15-5PH : on observe l'évolution d'une fissuration transgranulaire ductile dans la propagation sous azote (a), à une propagation intergranulaire sous 138 MPa d'hydrogène gazeux à faible <math>\Delta K</math> (b) et une propagation transgranulaire, avec du clivage fragile et des nombreuses fissures secondaires à <math>\Delta K</math> plus élevé (c) .....</i>	<i>23</i>
<i>Figure 1 - 11 : Schématisation des possibles zones de fragilisation dans le mécanisme HEDE [60]: en pointe de fissure (a), plusieurs dizaines de nanomètres en avant de la fissures, où l'effet de barrière des dislocations entraîne une contrainte de traction maximale (b), ou aux interfaces entre les grains ou avec des précipités, en avant de la fissure (c) .....</i>	<i>24</i>
<i>Figure 1 - 12 : Représentation du mécanisme HELP [60] : la présence d'hydrogène favorise le mouvement des dislocations et une localisation de la déformation plastique en pointe de fissure ; la propagation de la fissure se produit par un processus de coalescence des microcavités dans cette zone de contrainte hydrostatique et concentration d'hydrogène élevées.....</i>	<i>26</i>
<i>Figure 1 - 13 : Représentation du mécanisme AIDE [60] : la fragilisation est composé de deux étapes : diminution locale de l'énergie de cohésion du matériau, qui facilite la nucléation et l'émission de dislocations à partir de la pointe de la fissure ; nucléation et croissance de microcavités en avant de la pointe de la fissure .....</i>	<i>27</i>

<i>Figure 1 - 14 : Illustration de la propagation ductile de la fissure [60] : l'émission de dislocation depuis la pointe de la fissure est inhibée, ce qui produit l'éroussissement ; la coalescence des cavités résulte dans l'apparition des cupules sur la surface de rupture .....</i>	<i>28</i>
<i>Figure 2 - 1 : Schéma de la plaque laminée et indication des trois directions, épaisseur (C), transverse (T) et longitudinale (L).....</i>	<i>34</i>
<i>Figure 2 - 2 : Micrographie du fer Armco dans la direction de l'épaisseur (a) et présence de gros grains sur la surface (b) .....</i>	<i>34</i>
<i>Figure 2 - 3 : Traitement thermique TT2 : température de consigne et température mesurée dans l'enceinte du four.....</i>	<i>35</i>
<i>Figure 2 - 4 : Observations de la microstructure sur les trois plans pour les trois échantillons.....</i>	<i>36</i>
<i>Figure 2 - 5 : Evolution des hétérogénéités sur la surface de la tôle en fonction du traitement thermique</i>	<i>37</i>
<i>Figure 2 - 6 : Mesures de dureté sur les trois plans (LT, LC, CT) pour les trois échantillons (Ref, TT1, TT2), avec barres de dispersion .....</i>	<i>38</i>
<i>Figure 2 - 7 : Méthode des interceptes utilisé pour le calcul de la taille de grain .....</i>	<i>39</i>
<i>Figure 2 - 8 : Cartographie EBSD de la microstructure, avec la distribution de la taille des grains.....</i>	<i>40</i>
<i>Figure 2 - 9 : Texture cristallographique sur trois plans différents (image réalisée avec JTEX [113]) .....</i>	<i>41</i>
<i>Figure 2 - 10 : Texture cristallographique d'un acier à faible teneur de carbone, laminé à froid [112].....</i>	<i>41</i>
<i>Figure 2 - 11 : Caractères des joints de grains (image réalisée avec MTEX [114]) .....</i>	<i>42</i>
<i>Figure 2 - 12 : Type de joint de grains.....</i>	<i>42</i>
<i>Figure 2 - 13 : Extensomètre de base 10 mm et capacité <math>\pm 1</math> mm, utilisé pour les essais de comportement cyclique .....</i>	<i>43</i>
<i>Figure 2 - 14 : Géométrie des éprouvettes oligocycliques .....</i>	<i>44</i>
<i>Figure 2 - 15 : Courbes de traction pour les trois vitesses de déformation .....</i>	<i>46</i>
<i>Figure 2 - 16 : Evolution du pic de contrainte avec la vitesse de déformation .....</i>	<i>46</i>
<i>Figure 2 - 17 : Point de striction après le maximum de contrainte (a), et surface de rupture (b) .....</i>	<i>48</i>
<i>Figure 3 - 1 : Schéma d'une éprouvette Compact Tension (CT) utilisée dans cette étude, et ses dimensions définies par la norme ASTM E647 à partir de W et B .....</i>	<i>49</i>
<i>Figure 3 - 2 : Direction de prélèvement des éprouvettes CT dans la tôle laminée après recuit.....</i>	<i>51</i>
<i>Figure 3 - 3 : Banc d'essai Hycomat : machine de traction hydraulique INSTRON 8802 munie d'une chambre qui peut être pressurisée (a), intérieur de l'enceinte, avec les mors dédiés au chargement cyclique (b) et schéma de l'enceinte couplée à la ligne de charge (c) .....</i>	<i>52</i>
<i>Figure 3 - 4 : Microscope longue distance de type Questar installé en face de la fenêtre sur la porte de la machine (a) et suivi optique de la longueur de la fissure (b).....</i>	<i>53</i>
<i>Figure 3 - 5 : Branchement pour une jauge de déformation sur la gauche, et branchement des câbles pour la mesure de la longueur de fissure par la méthode de différence de potentiel sur la droite .....</i>	<i>54</i>
<i>Figure 3 - 6 : Détermination du polynôme qui exprime la relation entre la longueur de fissure <math>a/W</math> et la variation relative de différence de potentiel <math>V/V_0</math>.....</i>	<i>56</i>
<i>Figure 3 - 7 : Vitesses de propagation de fissures sous air. Mesures réalisées à différentes valeurs de <math>\Delta K</math> et corrigées par rapport à la fermeture (<math>\Delta K_{eff}</math>) .....</i>	<i>59</i>

<i>Figure 3 - 8 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures sous air à différents rapports de charge. Les vitesses de propagation se superposent, ce qui nous permet de valider les résultats de fermeture .....</i>	<i>59</i>
<i>Figure 3 - 9 : Comparaison des vitesses de propagation de fissure mesurées sous air et sous vide (a) et résultats obtenus par Pippan [129]. On remarque qu'à <math>\Delta K = 7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math> les résultats sont proches .....</i>	<i>60</i>
<i>Figure 3 - 10 : Observation au MEB de la surface de rupture au moment de la transition de la préfissuration sous air à la fissuration sous vide. La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>61</i>
<i>Figure 3 - 11 : Comparaison des surfaces de rupture à <math>\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math>. Fractographies sous vide réalisées à un grossissement x1000 (a) et x5000(b) et fractographies sous air réalisé à x1000 (c) et x5000(d). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>62</i>
<i>Figure 3 - 12 : Fractographies sous vide (a) et sous air (b) réalisées à <math>\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math>. La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>63</i>
<i>Figure 3 - 13 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures sous azote avec les vitesses sous air et sous vide .....</i>	<i>63</i>
<i>Figure 3 - 14 : Observations des surfaces de rupture de l'essai sous azote à <math>\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math> (a) et <math>\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math> (b). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>64</i>
<i>Figure 3 - 15 : Vitesses de propagation de fissures de fatigue sous 9 MPa d'hydrogène gazeux à <math>R=0.7</math> et <math>f=20\text{Hz}</math> comparées à celles observées sous air .....</i>	<i>65</i>
<i>Figure 3 - 16 : Fractographies de l'essai sous 9 MPa d'hydrogène réalisées à <math>\Delta K=5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math> à x100 (a) et x1000 (b), et <math>\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math> à x100 (c) et x1000 (d). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>66</i>
<i>Figure 3 - 17 : Image des facettes intergranulaires qui présentent un marquage « plastique » important sur la surface (a) et grossissement x5000 (b). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>67</i>
<i>Figure 3 - 18 : Propagation transgranulaire à <math>\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math> sous 9 MPa d'hydrogène. La fissure avance sur des plans cristallographiques bien définis à l'intérieur du grain, et laisse apparaître les joints de grains (a). A un grossissement plus élevé on peut observer une activité plastique limitée par rapport aux essais en environnement inerte (b). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>68</i>
<i>Figure 3 - 19 : Evolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue sous 35 MPa d'hydrogène gazeux pour différentes fréquences de chargement cyclique, comparées aux résultats obtenus à l'air et sous vide .....</i>	<i>69</i>
<i>Figure 3 - 20 : Début de la propagation sous hydrogène (repéré par la ligne rouge) : le mode de rupture devient immédiatement intergranulaire pour toutes les fréquences analysées (20 Hz (a) et 0.2 Hz (b)). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>70</i>
<i>Figure 3 - 21 : Observations des marquages plastiques sur les facettes intergranulaires à 20 Hz ((a) et à fort grandissement (b)) et à 0.2 Hz ((c) et à fort grandissement (d)) . La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>71</i>
<i>Figure 3 - 22 : Observation des variations des modes de rupture : passage à la propagation intergranulaire à <math>\Delta K = 8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math>, et passage à une propagation transgranulaire à <math>\Delta K = 13 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math>. La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....</i>	<i>72</i>

Figure 3 - 23 : Fractographies obtenues au moment de la transition des vitesses de propagation à 35 MPa pour les trois fréquences de sollicitation cyclique : 20 Hz (a), 2 Hz (b) et 0.2 Hz (c). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....	73
Figure 3 - 24 : Fractographies obtenues à $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ sous 35 MPa d'hydrogène gazeux pour les trois fréquences de sollicitation cyclique : 20 Hz (a), 2 Hz (b) et 0.2 Hz (c) ; fractographie obtenue à $\Delta K=25 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ à 20 Hz (d). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....	74
Figure 3 - 25 : Représentation des conditions de propagation en pointe de fissure : avancement intergranulaire dans une zone enrichie en hydrogène (a), représentation du mécanisme AIDE proposé par Lynch et al. [63] (b), avancement transgranulaire dans une zone riche en hydrogène (c), avancement transgranulaire à fort vitesse de propagation, plus grand de la zone qui peut être affectée par l'hydrogène (d).....	76
Figure 3 - 26 : Comparaison des vitesses de propagation sous hydrogène avec les résultats obtenus par Drexler et al. [73].....	77
Figure 3 - 27 : Comparaison des vitesses de propagation sous hydrogène avec les résultats obtenus par Wada [136].....	78
Figure 3 - 28 : Forme du signal de chargement cyclique : signal triangulaire en dent de scie comparé au signal sinusoïdal .....	79
Figure 3 - 29 : Evolution des vitesses de propagation de fissures sous 35 MPa d'hydrogène gazeux en fonction de la fréquence de sollicitation cyclique et de la forme du signal de sollicitation (sinusoïdal ou dent de scie).....	79
Figure 3 - 30 : Fractographies obtenues pour l'essai sous 35 MPa d'hydrogène gazeux et forme du signal à dent de scie à $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (a), $\Delta K=13 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (b) et $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (c). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite .....	80
Figure 3 - 31 : Comparaison des vitesses de propagation sous hydrogène à $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ en fonction du temps de cycle avec les résultats obtenus par Knop et al. [61] .....	81
Figure 3 - 32 : Evolution des vitesses de propagation de fissures en fonction de la pression d'hydrogène gazeux (35 et 3.5 MPa) pour une fréquence de sollicitation cyclique de 20 et 2 Hz .....	82
Figure 3 - 33 : Fractographies obtenues pour les essais sous 3.5 MPa d'hydrogène gazeux à $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (20 Hz (a) et 2 Hz (b)), $\Delta K=15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (20 Hz (c) et 2 Hz (d)), et $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (20 Hz (e) et 2 Hz (f)). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite.....	83
Figure 4 - 1 : Boucles d'hystérésis de l'essai de fatigue plastique en pilotage de déformation totale ( $\Delta \epsilon_{\text{tot}} = 0.56\%$ ).....	89
Figure 4 - 2 : Boucles d'hystérésis des essais de fatigue oligocyclique en pilotage de déformation plastique : $\Delta \epsilon_p = 0.2\%$ , $0.4\%$ et $0.8\%$ .....	90
Figure 4 - 3 : Courbes de consolidation cyclique pour les amplitudes de déformation plastique imposée $\Delta \epsilon_p = 0.2\%$ , $0.4\%$ et $0.8\%$ (essais jusqu'à rupture) .....	91
Figure 4 - 4 : Le cinq états déformés choisis sont représentés sur les courbes de consolidation .....	92
Figure 4 - 5 : Évolution de la contrainte en fonction de la déformation totale pour l'essai en contrainte imposée réalisé à la vitesse de 100 MPa/s (a), et pour l'essai réalisé à la vitesse de 1 MPa/s : courbe complète (b) et grossissement sur les cycles 2-8 (c) .....	94

Figure 4 - 6 : Définition de la contrainte interne $X$ , de la contrainte effective $\Sigma_{ef}$ , de la contrainte athermique $\Sigma_{\mu}$ et de la contrainte thermique $\Sigma^*$ [155] .....	95
Figure 4 - 7 : Evolution de la contrainte interne $X$ (sur la gauche) et de la contrainte athermique $\Sigma_{\mu}$ (sur la droite) pour l'essai mené à une vitesse de 100 MPa/s.....	96
Figure 4 - 8 : Evolution de la contrainte interne $X$ (sur la gauche) et de la contrainte athermique $\Sigma_{\mu}$ (sur la droite) pour l'essai mené à une vitesse de 1 MPa/s.....	96
Figure 4 - 9 : Plan de découpe de la partie utile d'une éprouvette cylindrique .....	97
Figure 4 - 10 : Images MET de l'état non déformé : dislocations dispersées et cellules de dislocations.....	97
Figure 4 - 11 : Cartographies de l'intérieur d'un grain des cinq échantillons déformés : $\Delta\epsilon_p=0.2\%$ , $\epsilon_{p,cum}=8$ (a), $\Delta\epsilon_p=0.2\%$ , $\epsilon_{p,cum}=32$ (b), $\Delta\epsilon_p=0.4\%$ , $\epsilon_{p,cum}=8$ (c), $\Delta\epsilon_p=0.4\%$ , $\epsilon_{p,cum}=32$ (d), $\Delta\epsilon_p=0.8\%$ , $\epsilon_{p,cum}=8$ (e).....	98
Figure 4 - 12 : Cellule de dislocations dans l'échantillon 4 ( $\Delta\epsilon_p = 0.4\%$ , $\epsilon_{p,cum} = 32$ ), et respective orientation de la direction de chargement (triangle standard en haut). En bas, triangle standard qui représente les facteurs de Schmid dans un cristal cubique centré .....	99
Figure 4 - 13 : Mesures de la taille moyenne des cellules $\lambda$ à partir des cartographies des cinq échantillons déformés et de l'état non déformé .....	101
Figure 4 - 14 : exemple des mesures de l'épaisseur des joints des cellules et des murs de dislocations qui se forment dans les cellules .....	102
Figure 4 - 15 : Indication des mesures de l'épaisseur des joints des cellules et des murs de dislocations sur les courbes de consolidation .....	103
Figure 4 - 16 : Spectres de désorption de l'échantillon 1, réalisés pour les trois vitesses de rampe, 115, 230 et 500 K/min.....	106
Figure 4 - 17 : Spectres de désorption des quatre échantillons à la vitesse de rampe de 230 K/min .....	107
Figure 4 - 18 : Dispositif expérimental pour réaliser des mesures de perméation électrochimique [164] .	109
Figure 4 - 19 : Schéma du fonctionnement de la cellule de perméation .....	110
Figure 5 - 1 : Représentation de la contrainte cohésive en pointe selon les théories de Dugdale (sur la gauche) et Barenblatt (sur la droite) [180] .....	116
Figure 5 - 2 : MZC pour la modélisation de la propagation de fissures pour différent types de phénomène : rupture transgranulaire, intergranulaire, coalescence de micro cavités, séparation d'interfaces, ou délamination des composites [184] .....	117
Figure 5 - 3 : TSL (a) et représentation de la « process zone » en pointe de fissure (b) [182].....	118
Figure 5 - 4 : Evolution des lois de traction-séparation « irréversibles » proposées par Roe et Siegmund [187] (a), et par Bouvard et al. [182] (b) .....	119
Figure 5 - 5 : Evolution de l'énergie de rupture idéale en fonction du taux de recouvrement en hydrogène $\vartheta$ [29] .....	121
Figure 5 - 6 : Influence du taux de recouvrement $\vartheta$ sur la TSL bilinéaire normalisée, avec l'hypothèse d'ouverture critique indépendante de $\vartheta$ [191] .....	121
Figure 5 - 7 : Chargement cyclique qui évolue dans le temps (sur la gauche), et évolution respective de la TSL (sur la droite).....	125
Figure 5 - 8 : Evolution de la TSL en fonction de la valeur du taux de recouvrement en hydrogène $\vartheta$ . A noter la réduction de la rigidité initiale et de l'énergie de rupture. L'ouverture critique reste inchangée	126
Figure 5 - 9 : Evolution des lois de comportement disponibles dans Abaqus [194] .....	127

Figure 5 - 10 : Elément cohésif personnalisé développé dans la subroutine UEL .....	127
Figure 5 - 11 : Maillage de la demi-éprouvette CT40, raffiné en pointe de fissure .....	130
Figure 5 - 12 : Evolution de deux termes du flux d'hydrogène, qui représentent la diffusion contrôlée par la loi de Fick et celle contrôlée par la contrainte hydrostatique, en fonction de la distance à partir de la pointe de la fissure.....	131
Figure 5 - 13 : Courbes R-CTOD simulées en l'absence d'hydrogène et sous hydrogène gazeux à 100 bar, pour différentes vitesses de chargement, en utilisant une loi de Fick ou le modèle de diffusion couplée de Krom .....	132
Figure 5 - 14 : Courbes expérimentales de propagation de fissures de fatigue dans l'acier 15-5PH, et résultats des simulations .....	133
Figure 5 - 15 : Vitesses de propagation des fissures de fatigue dans l'acier inoxydable martensitique 15-5PH : courbes expérimentales et résultats des simulations sous air et sous atmosphère d'hydrogène gazeux.....	134
Figure 5 - 16 : Diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure : influence de la pression (a), du $\Delta K$ (b) et de la fréquence de chargement (c).....	135
Figure 6 - 1 : Vitesses de propagation de fissures de fatigue sous air, dans les directions de prélèvement LT et TL, et sous 0.09 MPa et 9 MPa d'hydrogène [69].....	139
Figure 6 - 2 : Surfaces de rupture des éprouvettes testées sous différentes atmosphères : air ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (a), 0.09 MPa d'hydrogène ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (b), 9 MPa d'hydrogène avant la transition de vitesses de propagation ( $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (c), et 9MPa d'hydrogène après cette transition ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (d) .....	140
Figure 6 - 3 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures sous vide et sous azote avec les vitesses sous air pour l'acier 15-5PH.....	142
Figure 6 - 4 : Surfaces de rupture observées pour les éprouvettes testées sous vide (a) et sous 9 MPa d'azote (b), pour une valeur de $\Delta K = 12 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .....	143
Figure 6 - 5 : Evolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue en fonction de la pression d'hydrogène gazeux, comparées aux résultats obtenus sous air et sous azote .....	144
Figure 6 - 6 : Surfaces de rupture observées pour l'essai réalisé sous 0.9 MPa d'hydrogène, pour une valeur de $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (a), et $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (b).....	145
Figure 6 - 7 : Surfaces de rupture observées pour l'essai réalisé sous 40 MPa d'hydrogène, pour une valeur de $\Delta K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (a), et $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (b).....	145
Figure 6 - 8 : Evolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue en fonction de la fréquence de chargement cyclique sous 9 MPa d'hydrogène gazeux, comparées aux résultats obtenus sous air, sous azote et sous faible pression d'hydrogène, pour l'acier 15-5PH.....	146
Figure 6 - 9 : Surfaces de rupture observées pour les essais réalisés sous 9 MPa d'hydrogène et les fréquences de chargement de 2 Hz et 0.2 Hz, pour une valeur de $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (avant la transition des vitesses de propagation), et $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (après la transition).....	148
Figure 6 - 10 : Courbes de propagation de fissures sous 9 MPa d'hydrogène gazeux sous un chargement statique: charge imposée (●) et ouverture imposée (o).....	149

Figure 6 - 11 : Surfaces de rupture observées pour les essais statiques réalisés sous 9 MPa d'hydrogène en correspondance du K initial et loin du début de la propagation, pour l'essai en ouverture imposée (a et b), et de l'essai en charge imposée (c et d) .....	151
Figure 6 - 12 : Influence de la pression et de la fréquence de chargement cyclique sur les vitesses de propagation de fissures pour le niveau de $\Delta K = 6.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .....	152
Figure 6 - 13 : Influence de la pression d'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissure calculées en fonction du temps pour l'acier 15-5PH.....	153
Figure 6 - 14 : Vitesses de propagation de fissures exprimées en fonction du temps (da/dt), en fonction du $K_{max}$ atteint pendant les cycles de fatigue. Comparaison des vitesses de propagation pour les essais statiques et les essais de fatigue (pour toutes les fréquences) sous 9 MPa d'hydrogène gazeux .....	154
Figure 6 - 15 : Identification des directions de propagation de la fissure (x) et de chargement (y). On cherche les valeurs de z sur des lignes parallèles à la direction y, à partir de la lèvres de la fissure.....	156
Figure 6 - 16 : Exemple de cartographie 3D de la lèvres de fissure pour l'acier 15-5PH. « x » représente la direction de propagation de la fissure. La flèche indique la fin de la préfissuration à l'air, et le début de la propagation sous 9 MPa d'hydrogène à 20 Hz .....	157
Figure 6 - 17 : Schéma de l'acquisition des mesures de « retrait du matériau » dans la direction « z », sur une ligne qui s'étend dans la direction « y », à partir de la lèvres de la fissure, et perpendiculaire à celle-ci (ligne noire dans la figure) .....	158
Figure 6 - 18 : « retrait » latéral (en $\mu\text{m}$ ) dans le voisinage de la lèvres de fissure pour les essais sous air et sous azote, pour une valeur de $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .....	158
Figure 6 - 19 : « retrait » latéral (en $\mu\text{m}$ ) dans le voisinage de la lèvres de fissure pour l'essai sous azote, en fonction de la valeur de $\Delta K$ .....	159
Figure 6 - 20 : Influence d'une faible pression d'hydrogène sur le « retrait » du matériau dans le voisinage de la lèvres de fissure, pour différents $\Delta K$ .....	159
Figure 6 - 21 : Variation de la déformation hors plan sous 9 MPa d'hydrogène gazeux, à $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (a), et à $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ (b) .....	160
Figure 6 - 22 : « retrait » du matériau dans le voisinage de la lèvres de fissure, pour l'essai réalisé sous 40 MPa d'hydrogène gazeux, pour des valeurs de $\Delta K = 3.5, 5 \text{ et } 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .....	161
Figure 7 - 1 : Modèle 2D d'une demi-éprouvette CT avec une couche d'éléments cohésifs sur le trajet de fissure (en rouge), et une zone raffinée en pointe de fissure .....	166
Figure 7 - 2 : Effet de la régularisation visqueuse proposée pour une variation aléatoire de la variable d'endommagement dans le temps.....	170
Figure 7 - 3 : Cartographie de la concentration totale d'hydrogène dans les éléments de bulk en pointe de fissure, après 250 cycles de chargement, pour les pressions de 0.09 MPa (a) et 9 MPa (b).....	172
Figure 7 - 4 : Evolution de la TSL avec le chargement cyclique (a) et avec le taux de recouvrement en hydrogène (b) .....	173
Figure 7 - 5 : Déformation plastique cumulée calculée (SDV10) après 20 secondes de calcul, pour une fréquence de 20 Hz et une valeur de $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .....	173
Figure 7 - 6 : Diffusion de l'hydrogène autour de la fissure dans le cas d'une faible pression et à faible fréquence de chargement .....	174

Figure 7 - 7 : Diffusion de l'hydrogène après un temps de diffusion $t = 10$ s, pour un coefficient de diffusion $D_L=10^{-12}$ m <sup>2</sup> /s (a) et un coefficient de diffusion $D_L=10^{-11}$ m <sup>2</sup> /s (b).....	175
Figure 7 - 8 : Evolution de la concentration totale d'hydrogène en fonction de la distance à partir de la surface exposée à l'hydrogène .....	175
Figure 7 - 9 : Calculs de diffusion réalisés par Olden et al. [43]. Concentration d'hydrogène dans une plaque épaisse (a), et en pointe de fissure (b).....	176
Figure 7 - 10 : Comparaison des vitesses de propagation simulées en environnement inerte avec les résultats expérimentaux sur le 15-5PH.....	177
Figure 7 - 11 : Représentation de la concentration totale d'hydrogène (NT11) en pointe de fissure au début du calcul (a), à la fin du chargement monotone (b), et après 100 cycles de chargement cyclique (c) .....	179
Figure 7 - 12 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes concentrations d'hydrogène, comparées aux résultats expérimentaux. Toutes les vitesses ont été obtenues pour une fréquence de chargement de 20 Hz .....	179
Figure 7 - 13 : Diffusion de l'hydrogène pour la simulation sous 4000 MPa d'hydrogène. La concentration est très élevée près de la surface, mais la diffusion est encore limitée à deux éléments au-delà de la pointe de la fissure.....	181
Figure 7 - 14 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes fréquences de chargement et différentes concentrations d'hydrogène, comparées aux résultats expérimentaux .....	182
Figure 7 - 15 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes valeurs du coefficient de diffusion, à faible pression d'hydrogène et fréquence de chargement élevée, comparées aux résultats expérimentaux .....	183
Figure 7 - 16 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes valeurs de K imposées, pour un coefficient de diffusion $D_L = 10^{-12}$ m <sup>2</sup> /s et une pression de 9 MPa, comparées aux résultats expérimentaux .....	185
Figure 7 - 17 : Diffusion de l'hydrogène dans les simulations de propagation sous chargement statique, après 100 000 secondes et pour $K = 13$ MPa x m <sup>1/2</sup> , où la fissure n'a pas avancé (a), et après 2 900 secondes et pour $K = 25$ MPa x m <sup>1/2</sup> (b), où la fissure a avancé sur environ 500 µm .....	186
Figure 7 - 18 : Exemple de la modification de la limite d'élasticité $\sigma_y$ en fonction de la concentration d'hydrogène locale C .....	189
Figure 7 - 19 : Déformation plastique autour de la fissure : simulation sans effet de l'hydrogène sur la plasticité sur la gauche, et simulation avec l'effet de cette modification sur la droite .....	190
Figure 7 - 20 : Déformation hors plan autour de la fissure sans effet de l'hydrogène sur la plasticité (a), et avec l'effet de cette modification (b) pour une pression de 9 MPa, une valeur de $\Delta K = 10$ MPa x m <sup>1/2</sup> , et une fréquence de chargement cyclique de 0.2 Hz .....	190
Figure 7 - 21 : Comparaison du retrait du matériau autour de la fissure dans les cas expérimental et numérique, normalisés par rapport à la valeur maximale de retrait en environnement inerte .....	191
Figure 7 - 22 : Diffusion de l'hydrogène après 1000 secondes de calcul (20000 cycles de fatigue). Diffusion calculée avec la loi de Krom (haut), et modification apporté par l'utilisation du coefficient multiplicatif $\alpha_2 = 10$ (bas), pour un chargement de $\Delta K = 10$ MPa x m <sup>1/2</sup> .....	193
Figure 7 - 23 : Evolution de la concentration d'hydrogène à partir de la pointe de la fissure, dans la direction « y » .....	193

*Figure 8 - 1 : Courbes de propagation obtenues pour le 15-5PH (symboles pleines) et pour le fer pur (symboles ouverts) sous différentes pressions d'hydrogène gazeux et pour différentes fréquences de chargement cyclique .....199*

*Figure 8 - 2 : Surfaces de rupture dans le fer pur et l'acier 15-5PH : sous environnement inerte ou légèrement agressif (a et b), sous hydrogène pour de faibles valeurs de  $\Delta K$  (c et d) et pour des valeurs de  $\Delta K$  élevées (e et f) .....200*

# Liste des tableaux

<i>Tableau 2 - 1 : Composition chimique des impuretés du fer Armco, mesurée par le fabricant AK Steel.....</i>	<i>33</i>
<i>Tableau 2 - 2 : Mesures de dureté et sur les trois plans, et écart type .....</i>	<i>38</i>
<i>Tableau 2 - 3 : Valeurs des pics de contrainte pour différentes vitesses de déformation .....</i>	<i>47</i>
<i>Tableau 2 - 4 : Valeurs de limite d'élasticité, de résistance à la traction et de déformation maximale pour différentes vitesses de déformation .....</i>	<i>47</i>
<i>Tableau 3 - 1 : Taux d'impuretés dans l'hydrogène et dans l'azote, mesurés au moyen d'un spectromètre de masse .....</i>	<i>54</i>
<i>Tableau 4 - 1 : Observations et mesures à partir des images MET sur l'état non-déformé et sur les différents états déformés .....</i>	<i>100</i>
<i>Tableau 4 - 2 : Valeurs des concentrations mesurées à partir des spectres de désorption .....</i>	<i>107</i>
<i>Tableau 6 - 1 : Composition chimique de l'acier 15-5PH .....</i>	<i>137</i>
<i>Tableau 6 - 2 : Paramètres de la loi de comportement de l'acier 15-5PH .....</i>	<i>138</i>
<i>Tableau 7 - 1 : Influence de la taille de maille sur les vitesses de propagation de fissure, pour les valeurs de <math>\Delta K = 7.5, 10</math> et <math>15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}</math>. .....</i>	<i>168</i>

# Introduction

L'effet néfaste de l'hydrogène sur les métaux, et en particulier sur le fer et les aciers, a été mis en évidence par Johnson en 1874 [1]. Plus récemment des nombreuses études ont été menées sur la dégradation des performances des matériaux en présence d'hydrogène [2].

La fragilisation par l'hydrogène (FPH) est donc un phénomène bien identifié, qui conditionne de nombreux secteurs industriels. De nos jours, ces derniers s'intègrent dans un problème sociétal plus général qui est la recherche de sources d'énergie et de vecteurs associés susceptibles de remplacer les filières existantes tout en respectant l'environnement. L'utilisation de l'hydrogène comme vecteur énergétique semble une voie prometteuse. Sa combustion est propre, dans le sens où elle ne produit que de l'oxygène et de la vapeur d'eau (plus de la chaleur). Mais son développement reste conditionné à de nombreuses problématiques technologiques, comme le stockage ou le transport. La FPH est une cause importante dans certaines ruptures de pièces dans l'industrie. Le caractère des ruptures est souvent brutal, et les conséquences humaines et économiques peuvent être graves, notamment en raison de l'inflammabilité de l'hydrogène dans l'air ambiant [3,4].

Des centaines de ruptures se sont produites dans des réservoirs d'hydrogène dans les années 60 et 70 [5]. Dans le contexte général de la constitution de réseaux de transports d'hydrogène, il est indispensable de s'assurer de l'absence des risques de fragilisation des matériaux des systèmes de production, de stockage, et de distribution de l'hydrogène, qui sont fréquemment sollicités cycliquement. Ainsi, la connaissance du comportement en fatigue en présence d'hydrogène et de son interaction avec les défauts cristallins développés sous cette sollicitation sont deux éléments déterminants afin de proposer une démarche prédictive de l'endommagement.

La FPH peut se produire au cours de différentes opérations de fabrication ou pendant l'utilisation (où le métal peut entrer en contact avec de l'hydrogène atomique ou moléculaire). Les processus qui peuvent produire cette interaction comprennent la protection cathodique, le phosphatage, la corrosion, la galvanisation. Un cas particulier est le soudage à l'arc, au cours duquel l'hydrogène est libéré par l'humidité, par exemple dans le revêtement d'électrodes de soudage [6]. Pour minimiser ce risque, des électrodes spéciales, à faible taux d'hydrogène, sont utilisées pour le soudage des aciers à haute résistance. D'autres mécanismes d'introduction de l'hydrogène dans le métal sont la corrosion galvanique, ainsi que des réactions chimiques avec des acides ou d'autres réactifs. L'une de ces réactions chimiques implique sulfure d'hydrogène dans la fissuration sous contrainte, un processus important pour les industries pétrolières et gazières [7].

La FPH peut être prévenue par plusieurs méthodes, qui tentent d'éviter le contact entre le métal et l'hydrogène, en particulier pendant la phase de fabrication. L'utilisation d'une solution appropriée comme la galvanoplastie peut également aider à empêcher la FPH. En outre, des substrats métalliques peuvent être appliqués sur le métal [8].

Lorsque l'hydrogène est présent dans le matériau mais la fissure n'a pas encore amorcé, la FPH peut être évitée en supprimant la source d'hydrogène et en provoquant la diffusion de l'hydrogène à l'extérieur du métal par un traitement thermique [9].

Coudreuse *et al.* ont classifié différentes sources d'hydrogène impliquées dans le phénomène de la fragilisation par l'hydrogène [10]. Un schéma de cette classification est reporté en Figure 1. Ils distinguent tout d'abord les sources d'hydrogène selon l'origine de l'hydrogène. On parlera de source interne lors que l'hydrogène préexiste en quantité suffisamment importante dans le matériau au moment de l'endommagement, ou de source externe quand l'hydrogène est apporté depuis l'extérieur. Dans ce cas on peut différencier selon l'activité en hydrogène de la source, faible ou forte, c'est-à-dire la capacité de la source d'introduire une quantité plus ou moins importante d'hydrogène dans le matériau. Enfin, ils font une distinction selon le type de contraintes, internes ou externes.

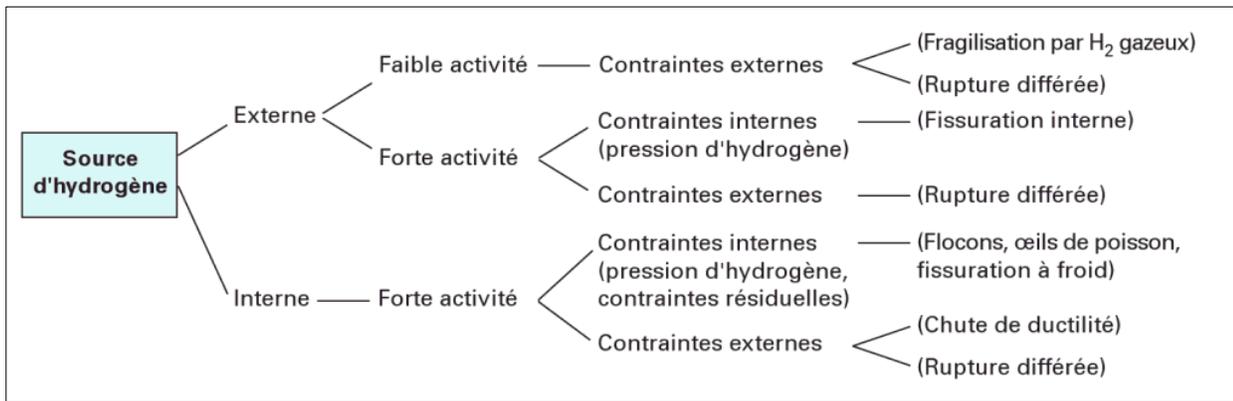


Figure 1 : Classification des différentes sources d'hydrogène dans les métaux [10]

Dans cette étude nous considérons le cas où l'hydrogène est introduit dans le matériau simultanément à la fissuration, sous forme gazeuse.

Le matériau choisi est le fer Armco, de microstructure ferritique, dont la susceptibilité à la FPH a été mise en évidence par Chandler et Walter [11] sur des essais de traction, fissuration et fluage à haute pression d'hydrogène gazeux. Il est utilisé comme matériau « modèle » pour sa microstructure simple, qui facilitera les observations des surfaces de rupture et des structures de déformation, ainsi que l'étude des différentes populations d'hydrogène qui diffusent dans le matériau (interstitiel ou piégé).

Des essais de propagation de fissure de fatigue sous haute pression d'hydrogène gazeux mettent en évidence une augmentation des vitesses de propagation qui dépend de la pression d'hydrogène et de la fréquence de chargement cyclique. Les observations des surfaces de rupture indiquent un effet de l'hydrogène sur la modification des modes de rupture, qui dépendent de la pression d'hydrogène, mais aussi de la fréquence de chargement et du niveau de  $\Delta K$ .

Un des principaux objectifs de ce travail est la compréhension des mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène. Dans ce but, et pour avoir des informations quantitatives sur les différents processus impliqués dans la perte de résistance à la fissuration, nous avons entrepris l'étude de l'interaction hydrogène-plasticité. Pour ce faire, des essais de comportement cyclique ont été menés à différentes amplitudes de déformation plastique imposée sur le matériau; les échantillons ainsi déformés ont été caractérisés au MET.

Par la suite, l'état de l'hydrogène dans le matériau déformé, après un chargement électrochimique en milieu acide, a été caractérisé par mesures de thermo-désorption (TDS) et de perméation électrochimique (détermination de la concentration d'hydrogène, des types et des énergies de piégeage, de la concentration des lacunes)

Ces dernières mesures peuvent être corrélées avec les observations MET de lames minces permettant d'évaluer la taille des cellules et la densité de dislocations afin de décrire plus finement l'interaction entre l'hydrogène et ces défauts.

Enfin, nous avons envisagé l'étude des possibles effets d'une exposition à l'hydrogène gazeux sur la plasticité cyclique. L'objectif final est l'interprétation des résultats obtenus, en visant une démarche de prédiction des cinétiques de fissuration dans la zone en pointe de fissure du matériau déformé cycliquement.

Au-delà de cette analyse qualitative des mécanismes, on souhaite également mettre en place des modèles quantitatifs et prédictifs des propriétés du matériau en fissuration, afin de prévenir les accidents, par exemple dans la conception des systèmes de production, de stockage, ou de distribution de l'hydrogène. Dans le but de modéliser et de prédire les vitesses de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène (deuxième objectif), un modèle numérique a été développé par Clara Moriconi dans ses travaux de thèse [12]. D'un point de vue plus fondamental, ce modèle nous donne l'opportunité de comprendre comment agissent les différents mécanismes de fragilisation au sein du matériau.

Ce modèle a été confronté à une première base de données expérimentale sur l'acier inoxydable martensitique 15-5PH. Bien que le modèle soit capable de prédire des vitesses de propagation de fissures plus élevées sous hydrogène, il présente des limites, surtout en ce qui concerne la représentation de la « transition » des vitesses de propagation, c'est-à-dire de l'augmentation significative observable sous haute pression d'hydrogène et/ou pour une faible fréquence de chargement.

Ces verrous motivent le besoin d'approfondir le modèle, et de l'enrichir avec des informations dérivées des observations expérimentales. Pour ce faire, la campagne expérimentale sur le 15-5PH a été poursuivie, avec une analyse approfondie de la variation des vitesses de propagation et des observations des surfaces de fracture. De plus, nous avons réalisé des observations sur la déformation hors plan au niveau des lèvres de la fissure, en mettant en évidence l'effet de l'hydrogène sur la plasticité en pointe de fissure. Ceci est un résultat très original, on ne retrouve pas des observations similaires dans la littérature. Nous avons utilisé ces résultats afin de modifier l'effet de l'hydrogène sur la plasticité des éléments de bulk dans le modèle numérique. De cette manière, le modèle nous permet de mieux comprendre le rôle de l'hydrogène dans la modification des propriétés mécaniques du matériau et des mécanismes d'endommagement en pointe de fissure. Ce modèle de zone cohésive, qui dans sa formulation initiale représentait le mécanisme de fragilisation HEDE (décohésion fragile), ainsi modifié, permet alors de nous rapprocher à un mécanisme de fragilisation plus proche de la réalité.

Ce manuscrit s'articule en trois parties.

La première partie comprend une synthèse bibliographique sur le phénomène de la FPH. Il s'agit d'un bilan sur les sources d'hydrogène, la diffusion et le transport de l'hydrogène dans les métaux, l'effet de la contrainte sur la diffusion, le piégeage de l'hydrogène, et l'équilibre d'Orani. L'effet néfaste de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration dans les métaux est ensuite analysé, en relation avec l'influence de la microstructure. Enfin, les principales théories de fissuration assistée par l'hydrogène sont discutées.

La deuxième partie présentera l'étude de la propagation de fissures de fatigue sous haute pression d'hydrogène gazeux dans le fer Armco, choisi comme matériau « modèle », et l'étude de l'interaction hydrogène-plasticité, afin d'obtenir des informations quantitatives sur les différents processus impliqués dans la perte de résistance à la fissuration. Les essais de fissuration sous haute pression d'hydrogène gazeux seront réalisés sur le dispositif Hycomat, développé à l'Institut Pprime, sur le site du CEAT (Centre d'études aérodynamiques et thermiques). Les analyses de l'interaction hydrogène-plasticité seront réalisées au laboratoire LaSIE de l'université de La Rochelle.

Enfin, la dernière partie présentera le développement d'un modèle de zone cohésive avec une loi de comportement spécifique, capable de rendre compte de la diminution de la résistance à la fissuration en présence d'hydrogène. Cette partie suit les travaux de thèse de Clara Moriconi [12]. Le développement du modèle est basé sur les résultats expérimentaux sur la propagation de fissures de fatigue dans l'acier martensitique 15-5PH. Plusieurs essais de fissuration sous hydrogène gazeux ont été menés afin de compléter la base de données expérimentale. Des mesures de la déformation plastique hors plan en pointe de fissure permettront de proposer une amélioration du modèle en introduisant un effet de l'hydrogène sur le comportement plastique des éléments de volume. L'étude des composantes de la loi de diffusion de Krom permettra de montrer l'importance du gradient de contrainte hydrostatique sur la diffusion et l'accumulation de l'hydrogène en pointe de fissure, ce qui a un rôle fondamental sur la transition des vitesses de propagation observée expérimentalement.

# I Etat de l'art

La première partie du manuscrit présente une étude bibliographique du phénomène de la fragilisation par hydrogène (dorénavant désignée FPH), c'est-à-dire le processus par lequel un métal présente un comportement « fragile » à cause de l'interaction entre hydrogène et métal. Dans cette étude nous nous intéressons, plus particulièrement, à la propagation de fissures de fatigue assistée par l'hydrogène (en anglais « Hydrogen Assisted (ou Induced) Cracking »).

L'étude bibliographique se concentre sur trois aspects principaux. Premièrement, nous présenterons une revue sur les généralités de la FPH, et sur la diffusion et le transport de l'hydrogène dans les métaux. Ensuite, l'effet néfaste de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration dans les métaux est analysé. Les principaux résultats observés dans la littérature sont reportés, et le rôle de la microstructure est analysé, au travers de la comparaison des résultats présents dans la littérature sur différents matériaux métalliques. Enfin, la dernière partie présente les principaux mécanismes de FPH proposé dans la littérature : HEDE, HELP et AIDE. Ces théories sont discutées, et analysées au vu des observations en faveur ou contre chacune d'entre elles.



# Chapitre 1

## Fissuration assistée par l'hydrogène

### 1.1 Généralités sur la FPH

L'effet néfaste de l'hydrogène sur les métaux, et en particulier sur le fer et les aciers, a été mis en évidence par Johnson [1], qui en 1874 décrit une chute de la ductilité du fer pur après chargement cathodique.

Depuis, de nombreux travaux ont été menés pour analyser l'effet de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques des matériaux, et en particulier des métaux. Gangloff et Somerday ont étudié l'effet de l'hydrogène sur les métaux utilisés dans des systèmes liés à la production, transport et stockage de l'hydrogène gazeux [2]. Ils ont montré que l'hydrogène favorise une dégradation des performances des matériaux structuraux. La FPH est une cause importante dans certaines ruptures de pièces dans l'industrie.

Dans une économie où l'hydrogène peut être vu comme un vecteur d'énergie alternatif aux énergies fossiles, il est nécessaire de garantir la sécurité des systèmes de production, de stockage, de distribution de l'hydrogène. Prédire le comportement des matériaux lorsqu'ils sont exposés à l'hydrogène nécessite des informations non seulement sur les propriétés mécaniques du matériau et la résistance à la corrosion, mais aussi sur les caractéristiques de déformation et de rupture dans cet environnement [2]. De plus, la dégradation des performances est fortement dépendante des conditions de sollicitation (par exemple la contrainte en pointe de fissure, la pression d'hydrogène, le temps d'exposition, la température), mais elle est aussi tributaire du matériau (composition, microstructure) et du milieu hydrogénéant, ce qui rend encore plus compliqué l'étude du phénomène de la FPH.

Des nombreux travaux présents dans la littérature montrent un effet néfaste de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques des métaux. La Figure 1 - 1, par exemple, met en évidence une réduction de ductilité lors d'un essai de traction réalisé sous 300 bar d'hydrogène, par rapport à un essai sous 300 bar d'azote sur du fer Armco, un acier X80 et un acier perlitique [13].

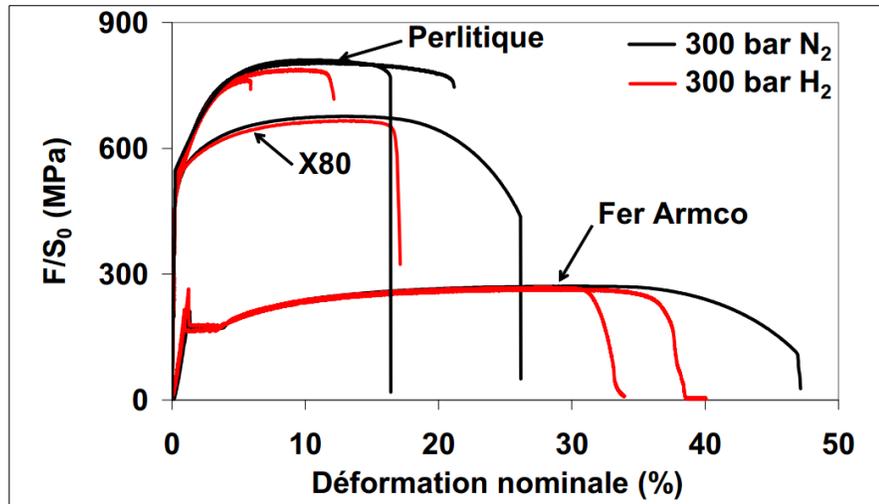


Figure 1 - 1 : Réduction de ductilité dans un essai de traction réalisé sous 300 bar d'hydrogène par rapport à l'essai réalisé sous azote, pour trois différents métaux [13]

Cialone et Holbrook [14] et Hardie *et al.* [15] ont également montré une réduction de la ductilité et de la striction sur des aciers ferritiques à haute limite d'élasticité. Ils ont constaté une fragilisation plus importante dans les aciers à fort résistance. En particulier, Hardie *et al.* [15] ont montré que la fragilisation du matériau augmente avec la limite d'élasticité. Cialone et Holbrook [14] et Xu [16] ont de plus observé une forte réduction de la ténacité des aciers sous hydrogène gazeux. Xu, en particulier, montre que la ténacité d'un acier X80 passe de  $245 \text{ kJ/m}^2$  sous air à  $85 \text{ kJ/m}^2$  sous 34 bar d'hydrogène et  $50 \text{ kJ/m}^2$  sous 275 bar d'hydrogène.

Matsui *et al.* [17] ont mis en évidence un effet de l'hydrogène absorbé sur la limite d'élasticité du fer pur. En utilisant un chargement par voie cathodique, ils ont montré des variations de l'adoucissement ou du durcissement induit par l'hydrogène, en fonction de la pureté du matériau et des conditions de chargement. En particulier, ils ont observé un durcissement plus important pour le matériau avec plus d'impureté. Par contre, ils affirment que l'adoucissement est probablement dû à l'interaction entre l'hydrogène et les dislocations vis.

Les travaux de Ulmer et Altstetter [18], menés sur un acier austénitique chargé cathodiquement, ont mis en évidence l'influence de l'hydrogène sur la limite élastique et le taux d'écrouissage. Ils ont observé une augmentation régulière de la limite élastique avec la concentration d'hydrogène. Par contre, ils ont identifié une valeur seuil de concentration, au-dessus de laquelle le taux d'écrouissage diminue, et en-dessous de laquelle il augmente.

Les atomes dissous dans le matériau peuvent provoquer l'adoucissement ou le durcissement du matériau, à cause de la variation des contraintes requises pour le mouvement des dislocations. En particulier, un effet adoucissant élevé a été observé pour les métaux cubiques centrés [19,20]. Kimura et Matsui ont discuté les conditions qui amènent à l'adoucissement ou durcissement du fer pur [21]. Ils ont montré que les variations de comportement dépendent fortement de la pureté du matériau et de la température.

Avant de décrire les mécanismes de FPH proposées et les observations qui les étayent, il est crucial de discuter des aspects fondamentaux de la FPH, notamment les sources d'hydrogène, les mécanismes de diffusion et de transport de l'hydrogène, et l'effet de l'hydrogène gazeux sur la résistance à la fissuration.

## 1.2 Sources d'hydrogène

Comme il a été évoqué précédemment, la présence d'hydrogène dans un réseau métallique peut entraîner d'importantes détériorations des propriétés mécaniques. Ces atomes d'hydrogène peuvent avoir différentes origines :

- introduction d'hydrogène dans le matériau à l'élaboration ou lors d'opérations de transformation et de mise en œuvre (traitements thermiques, soudage) ;
- utilisation des aciers en présence d'hydrogène (stockage de l'hydrogène gazeux) ou de mélanges gazeux hydrogénés ;
- hydrogène produit par des réactions électrolytiques (traitements de surface, protection cathodique) ;
- hydrogène provenant des réactions de corrosion (environnements aqueux).

La dégradation de la résistance à la fissuration peut être distinguée en « internal hydrogen assisted cracking » (IHAC) and « hydrogen environmentally assisted cracking » (HEAC).

IHAC se réfère à l'hydrogène dissout dans le matériau pendant la phase de fabrication, d'assemblage ou par exposition environnementale (préalable au chargement mécanique). Dans ce type de fragilisation, le chargement mécanique est subséquent à l'exposition du matériau. La HEAC concerne l'interaction des atomes d'hydrogène avec le matériau soumis à la contrainte ( et don à la déformation mécanique). Souvent, en fait, l'interaction entre hydrogène et déformation est localisée dans une zone de concentration des contraintes, par exemple en pointe de fissure.

Pour la mise en évidence du phénomène de la FPH, différents types d'essais peuvent alors être envisagés, avec différents types de chargement : des essais mécaniques à l'air sur des matériaux ayant subi un chargement préalable en hydrogène (chargement électrolytique en milieu aqueux ou en bain de sels fondus) dans le cas IHAC, ou bien des essais mécaniques sous pression d'hydrogène gazeux, consistant à appliquer une sollicitation mécanique simultanément à une exposition directe à de l'hydrogène gazeux pendant toute la durée de l'essai (HEAC). Une autre possibilité est le chargement in-situ durant la déformation. Le choix entre ces différentes techniques est guidé par des considérations métallurgiques.

San Marchi et Somerday [22] donnent des références techniques pour l'utilisation des matériaux métalliques sous hydrogène, et pour la réalisation d'essais de caractérisation. Ils recommandent l'utilisation des techniques de préchargement en hydrogène uniquement lorsque la diffusivité de l'hydrogène est inférieure à  $10^{-15}$  m<sup>2</sup>/s (typiquement sur des aciers austénitiques), pour éviter qu'une partie importante de l'hydrogène puisse désorber avant ou pendant l'essai. A l'inverse, des essais sous hydrogène gazeux sont conseillées lorsque la diffusivité de l'hydrogène dans le matériau est élevée. Par contre, un chargement in situ ne garantit pas une absorption suffisante si la vitesse de déformation est relativement élevée.

Afin de comprendre le rôle de l'hydrogène dans la FPH, il est crucial de connaître les étapes amenant l'hydrogène à pénétrer dans le matériau. Le paragraphe suivant présente les mécanismes d'entrée de l'hydrogène dans les métaux en atmosphère d'hydrogène gazeux (celle utilisée lors de nos essais expérimentaux), et la diffusion de l'hydrogène au sein du matériau. Ensuite, le paragraphe sur le « transport » de l'hydrogène montrera la distinction entre la diffusion interstitielle et le piégeage, et l'équilibre des deux populations d'hydrogène.

## 1.3 Mécanismes de diffusion de l'hydrogène

Dans cette étude, l'hydrogène gazeux sera utilisé pour le chargement en hydrogène. Ce type de chargement est simultané aux essais mécaniques. Il est donc important d'analyser les mécanismes de diffusion de l'hydrogène gazeux à travers les métaux. Dans ce paragraphe, on analysera les mécanismes de diffusion de l'hydrogène gazeux à travers un métal, sans tenir compte du chargement mécanique ou de la déformation plastique. Le prochain paragraphe montrera l'effet de la contrainte hydrostatique et de la déformation plastique sur le transport de l'hydrogène à l'intérieur du matériau.

Les réseaux atomiques des métaux sont perméables à l'hydrogène, par une diffusion des atomes dans les espaces interstitiels. La perméation implique plusieurs étapes :

- la dissociation et l'adsorption des molécules diatomiques sur la surface du matériau;
- la diffusion des atomes à travers le métal ;
- la réassociation des atomes et désorption du matériau, lorsque la concentration locale en surface est supérieure à celle d'équilibre (voir Figure 1 - 2).

### 1.3.1 Dissociation et adsorption

La dissociation des molécules d'hydrogène et l'adsorption sur la surface du métal sont deux mécanismes strictement liés.

Dans un premier temps, les molécules d'hydrogène entrent en contact avec la surface du matériau et se dissocient, et les atomes sont adsorbés sur la surface métallique. La réactivité de ces molécules est fondamentale pour la création des liaisons de type Van Der Waals entre les atomes de surface et les atomes d'hydrogène.

Cette réaction de dissociation des molécules d'hydrogène et adsorption sur la surface est réversible, dans le sens où, une fois atteint l'équilibre, il y aura autant de molécules qui se dissocient que d'atomes qui désorbent et se réassocient pour former une molécule d'hydrogène gazeux, à température donnée. Un schéma de cette dynamique est donné par Hassan [23], montré en Figure 1 - 2.

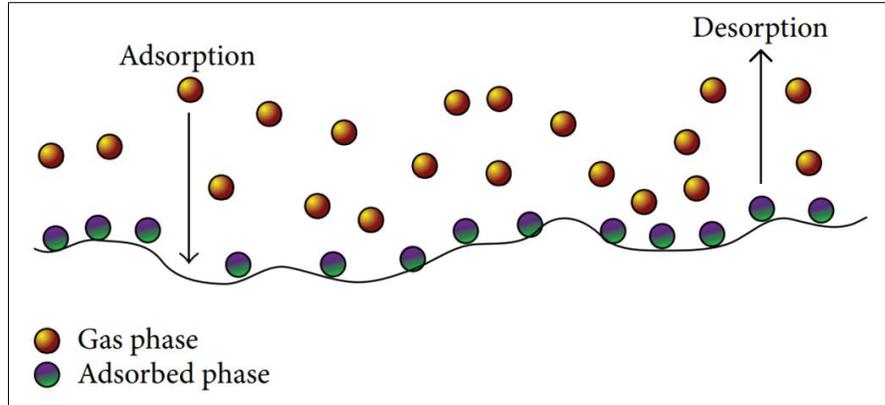


Figure 1 - 2 : Représentation de la dynamique d'adsorption et désorption, par Hassan [23]

On peut définir le taux de recouvrement  $\theta$  comme le rapport entre le nombre de sites de la surface du matériau occupés par les atomes d'hydrogène adsorbés et le nombre de sites totale disponible sur la surface pour l'adsorption. La valeur de  $\theta$  sera alors comprise entre 0 et 1, où 0 correspond à l'absence d'hydrogène dans les sites d'adsorption présents sur la surface libre, et 1 correspond à la totalité des sites d'adsorption occupés par atomes d'hydrogène.

La valeur de  $\theta$  dépend de plusieurs facteurs : la température, par exemple, peut modifier la cinétique d'adsorption et de désorption (thermiquement activée), tandis que la pression d'hydrogène a un effet direct sur la concentration de molécules d'hydrogène en contact avec la surface, et déplace l'équilibre dans la réaction de désorption. Enfin, l'état de la surface est fondamental dans ce processus. La formation d'une couche d'oxyde, par exemple, limite la dissociation des molécules d'hydrogène, qui nécessitent une plus forte énergie d'activation pour se dissocier et être adsorbées en surface.

L'isotherme de Langmuir permet de décrire la dépendance du taux de recouvrement  $\theta$  vis-à-vis de la concentration  $C$  d'hydrogène en solution :

$$\theta = \frac{b(T)C}{1 + b(T)C} \quad (1.1)$$

où  $b(T)$  est le coefficient d'adsorption, défini comme :

$$b(T) = \exp\left(\frac{\Delta g_b^0}{RT}\right) \quad (1.2)$$

Dans cette équation,  $\Delta g_b^0$  représente la différence d'énergie libre entre la surface et le cœur du matériau,  $R$  est la constante des gaz parfaits et  $T$  est la température. Des nombreuses valeurs ont été proposées dans la littérature pour  $\Delta g_b^0$ . Serebrinsky *et al.* [24], en particulier, ont choisi la valeur de 30 kJ/mol, comme aussi Gerberich *et al.* [25], tandis que Hirth [26] a utilisé une valeur légèrement plus faible, 28.6 kJ/mol. Moriconi *et al.* [12,27,28] ont utilisé la valeur de 36 kJ/mol dans un modèle de zones cohésives pour la simulation de la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux.

Cette variation de la valeur d'énergie libre qu'on observe dans la littérature souligne la difficulté à identifier précisément cette énergie. Dans cette étude, qui poursuit les travaux de thèse de Clara Moriconi [12], l'influence de cette valeur sur les résultats numériques sera analysée et discutée. D'après l'isotherme de Langmuir, les vitesses d'adsorption et désorption sont proportionnelles à la concentration d'hydrogène  $C$  et à la fraction de sites d'adsorption respectivement libres ( $1-\theta$ ) et occupés ( $\theta$ ). La Figure 1 - 3 montre la relation entre le taux de recouvrement  $\theta$  et la concentration  $C$ , (normalisée par rapport à une concentration maximale arbitraire, calculée avec la loi de Sievert), en fonction de la valeur du coefficient d'adsorption  $b(T)$  :

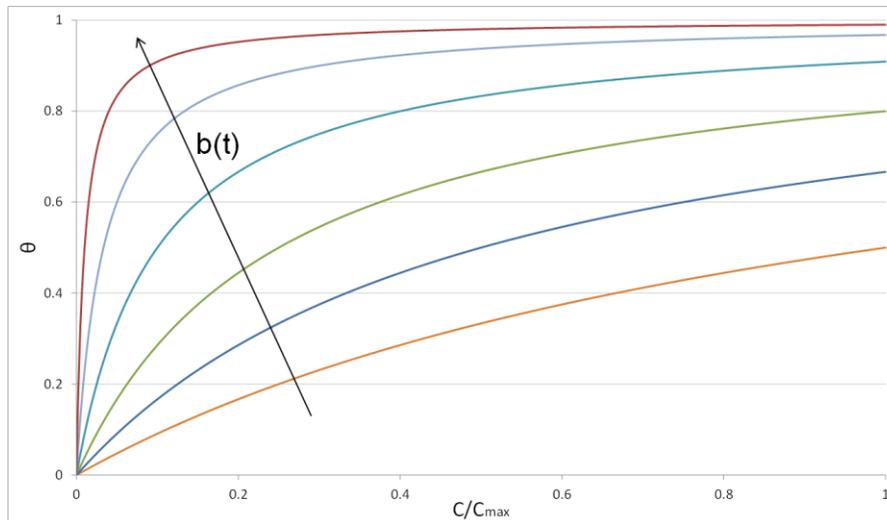


Figure 1 - 3 : Evolution de l'isotherme de Langmuir en fonction de la valeur du coefficient d'adsorption  $b(T)$

Comme le montre la figure, plus la valeur de  $b(T)$  est élevée plus le taux de recouvrement est élevé pour la même concentration d'hydrogène.

Ceci nous donne une idée de l'évolution de  $\theta$  en fonction de la pression d'hydrogène, à une température donnée dans l'hypothèse de surface uniforme, sans formation de couche d'oxyde, et pour une valeur d'énergie d'adsorption constante. Cette formulation pourra donc être utilisée dans un modèle numérique, en tenant compte des hypothèses énoncées.

### 1.3.2 Absorption

Suite à l'adsorption de l'hydrogène en surface, les atomes se déplacent vers les sites interstitiels à l'intérieur du matériau.

Jiang et Carter [29] ont conduit des calculs de diffusion dans une approche ab initio. Ils en déduisent que l'hydrogène dissout dans le fer (de structure cubique centré) occupe des sites tétraédriques dans un grand intervalle de concentrations. Ceci valide l'hypothèse que les atomes d'hydrogène diffusent et se positionnent dans les sites interstitiels du réseau métallique. L'hydrogène peut ensuite être piégé par les défauts microstructuraux du matériau.

La solubilité de l'hydrogène dans les métaux peut être évaluée par la loi de Sievert [30]:

$$S = S_0 * \sqrt{p} * e^{-\Delta H/RT} \quad (1.3)$$

où  $S_0$  est une constante de solubilité,  $p$  est la pression partielle,  $\Delta H$  est l'enthalpie de dissolution (en J/mol),  $R$  est la constante des gaz parfaits ( $=8.314$  J/mol/K) et  $T$  est la température (en K). La loi de Sievert est une relation expérimentale, qui indique que la pénétration d'un gaz dans un métal est précédée d'une phase de dissolution des molécules, qu'elle dépend de la température, et qu'elle est proportionnelle à la racine carrée de la pression du gaz. De nombreux travaux portent sur l'identification de l'enthalpie de dissolution  $\Delta H$ . En particulier, on peut trouver dans la littérature une valeur de  $28600$  J/mol pour le fer alpha [26], ce qui correspond à une concentration d'hydrogène de l'ordre de  $2.6 \times 10^{-4}$  ppm masse à température ambiante et sous une pression de 1 atm d'hydrogène. Par contre, pour des aciers austénitiques, dans les mêmes conditions de pression et température, Tison [31] a calculé une solubilité de 0.35 ppm masse. D'après la loi de Sievert donc, la solubilité de l'hydrogène est très faible dans le fer alpha par rapport à d'autres aciers. Par contre, la diffusivité est très élevée, comme montré par Crank [32] (coefficient de diffusion de l'ordre de  $10^{-8}$  m<sup>2</sup>/s).

D'après la loi de Sievert, la solubilité de l'hydrogène dépend de la racine carrée de la pression et de la température. La Figure 1 - 4 montre cette dépendance, dans le cas d'une enthalpie de dissolution de  $28600$  J/mol (valeur identifiée par Hirth [26] sur du fer alpha).

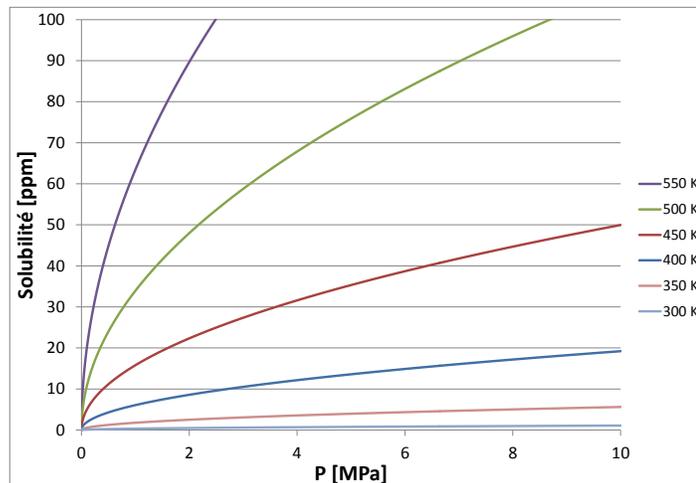


Figure 1 - 4 : Evolution de la solubilité de l'hydrogène dans le fer alpha en fonction de la pression et de la température, dans le cas d'une enthalpie de dissolution de  $28600$  J/mol [26]

La Figure 1 - 4 montre comment la solubilité peut varier fortement avec la température et la pression. Il convient par conséquent de bien maîtriser ces paramètres lors des essais mécaniques, car une petite variation de température et de pression peut se traduire par une variation importante de la quantité d'hydrogène qui pénètre dans le matériau, et de ce fait conduire à un changement des mécanismes de fragilisation. En particulier, sur la Figure 1 - 4 on remarque que la solubilité de l'hydrogène dans le fer est assez faible à température ambiante.

## 1.4 Transport de l'hydrogène

L'hydrogène est l'atome de plus petite taille, il peut donc facilement pénétrer dans le réseau atomique des métaux. Il peut alors diffuser dans les sites interstitiels, mais il peut aussi être piégé dans des défauts microstructuraux tels que les dislocations. De plus, à cause de son grand volume molaire partiel ( $2 \times 10^{-6} \text{ m}^3$  pour le fer alpha [26,33]), l'hydrogène est très sensible aux champs de contraintes. L'hydrogène diffuse plus facilement dans le réseau dilaté par une contrainte hydrostatique positive (appliquée ou bien résiduelle). Il faut donc en tenir compte dans les calculs de diffusion, pour estimer correctement les quantités d'hydrogène présentes dans la microstructure et pouvant fragiliser le matériau.

Le phénomène de la FPH est fortement lié à la quantité effective d'hydrogène présente dans le matériau. L'**hydrogène interstitiel**, ou diffusible, pénètre dans le réseau atomique du métal et occupe des sites dits interstitiels, par exemple des sites tétraédriques dans la structure cubique centrée du fer pur. Nous noterons  $C_L$  la concentration d'hydrogène interstitiel (Lattice concentration). De nombreux auteurs ont montré que la diffusivité de l'hydrogène dans le fer peut varier en fonction de la température ou de la déformation plastique [34–39]. Dans ce dernier cas, la variation de la diffusivité est due au piégeage des atomes d'hydrogène dans les défauts de la microstructure du fer. Nous noterons  $C_T$  la concentration d'**hydrogène piégé** (Trapped concentration).

La concentration totale en hydrogène vaut :

$$C = C_L + C_T \quad (1.4)$$

Dans ce paragraphe nous présentons la diffusion réticulaire de l'hydrogène, puis le phénomène du piégeage, et enfin l'équilibre entre ces deux populations d'hydrogène.

### 1.4.1 Diffusion interstitielle

L'hydrogène a une vitesse de perméation très élevée comparée à d'autres gaz, tels que l'azote et l'oxygène, de 15 à 20 ordres de grandeurs [40]. Phénoménologiquement, cette diffusivité élevée est une conséquence de la faible énergie d'activation pour la diffusion de l'hydrogène [41].

En l'absence des contraintes (appliqués ou résiduelles), la loi de Fick exprime la diffusion interstitielle de l'hydrogène :

$$J = -D_L * \nabla C_L \quad (1.5)$$

où  $J$  est le flux d'hydrogène (en atomes/ $\text{m}^2/\text{s}$ ),  $D_L$  est le coefficient de diffusion réticulaire (en  $\text{m}^2/\text{s}$ ) et  $C_L$  est la concentration d'hydrogène réticulaire, qui est fonction de la direction et du temps.

La loi de Fick décrit classiquement la diffusion réticulaire de l'hydrogène, en l'absence de toute autre force motrice. A cause de son grand volume partiel molaire, l'hydrogène est très sensible

aux champs de contraintes [33]. Sofronis et McMeeking [42] ont conduit des analyses de diffusion par élément finis, en ajoutant l'effet de la contrainte hydrostatique et du piégeage. En particulier, grâce à l'équilibre entre les populations d'hydrogène interstitiel et piégé (paragraphe 1.4.3), ils ont exprimé le flux d'hydrogène en fonction de la seule concentration d'hydrogène interstitiel  $C_L$  :

$$J = -D_L \nabla C_L + \frac{D_L C_L \bar{V}_H}{RT} \nabla \sigma_h \quad (1.6)$$

où  $D_L$  est le coefficient de diffusion interstitiel,  $\bar{V}_H$  est le volume molaire partiel,  $R$  est la constante des gaz parfaits,  $T$  est la température, et  $\sigma_h$  la contrainte hydrostatique.

Le flux est alors l'addition de deux composantes séparées : la première dépend seulement du gradient de la concentration d'hydrogène, et représente la loi de Fick ; la deuxième représente la contribution de la contrainte hydrostatique à la diffusion. Les signes dans l'équation indiquent que le flux d'hydrogène diffuse vers les zones où la concentration est la plus faible, et vers les zones où la pression hydrostatique est la plus forte.

Le coefficient de diffusion  $D_L$  dépend de la température. Crank [32] exprime cette dépendance sous une forme exponentielle :

$$D_L = D_0 * e^{-Q/RT} \quad (1.7)$$

où, pour le fer alpha, le facteur pré exponentiel est  $D_0 = 1.6 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ , et l'énergie d'activation  $Q = 7075 \text{ J/mol}$ . Cela nous donne, pour une température  $T = 300 \text{ K}$ , un coefficient de diffusion d'environ  $D_L = 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ .

La valeur du coefficient de diffusion pour le fer pur est très élevée par rapport aux aciers. Par exemple, pour des aciers martensitiques, la littérature donne des valeurs de l'ordre de  $D_L = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  [22,43]. Des valeurs encore plus faibles sont données pour les aciers austénitiques, de l'ordre de  $D_L = 10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$  [44].

## 1.4.2 Piégeage

Les atomes d'hydrogène se déplacent dans la microstructure du métal par des « sauts » d'un site interstitiel à un autre. Ces « sauts » nécessitent une énergie d'activation permettant de franchir la barrière énergétique entre les deux sites. Le phénomène du piégeage peut être expliqué par l'existence de sites avec un niveau d'énergie plus faible que celui des sites interstitiels [45]. La Figure 1 - 5 montre les niveaux d'énergie des sites interstitiels (B) et des sites de piégeage (A). L'énergie d'activation nécessaire pour s'échapper d'un site de piégeage ( $E_a$ ) est plus élevée que celle des sites interstitiels ( $E_n$ ). Sur le schéma,  $E_b$  représente la différence d'énergie entre le site interstitiel et le site de piégeage, et  $E_s$  représente l'énergie d'activation des sites interstitiels, pour la diffusion réticulaire. Afin de comprendre la diffusion de l'hydrogène, il est important de connaître la valeur de  $E_a$  pour chaque site de piégeage.

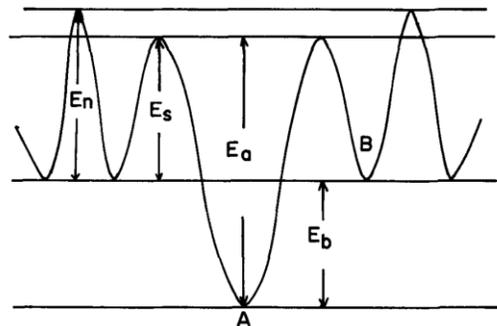


Figure 1 - 5 : Schématisation des niveaux d'énergie d'activation des sites interstitiels (B) et des sites de piégeage (A) [45]

Kumnick et Johnson [46] ont mis en évidence la présence de l'hydrogène piégé dans la microstructure, à travers des essais de perméation sur un acier déformé à froid. Ils ont supposé que ces pièges sont associés à des « imperfections » de la microstructure. En particulier, ils supposent que les dislocations sont des sites importants dans le phénomène du piégeage de l'hydrogène.

Pressouyre a proposé une classification de ces pièges dans le fer par la nature physique des défauts [47], par exemple des lacunes, des dislocations, des micro vides, des éléments d'alliage, des interfaces. Moro [13], dans ses travaux de thèse sur la FPH des aciers, a proposé une schématisation des défauts microstructuraux de l'acier pouvant agir comme sites de piégeage, présenté en Figure 1 - 6.

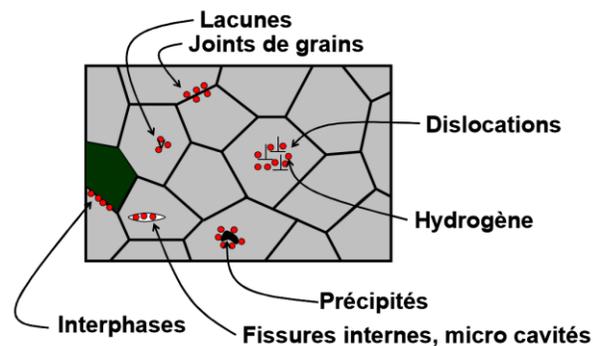


Figure 1 - 6 : Schématisation des différents sites de piégeage de l'hydrogène, dans les défauts microstructuraux [13]

Oriani [39] a estimé la densité des pièges et de l'énergie d'interaction hydrogène-piège, et il affirme que les micro-vides et les interfaces sont des sites majeurs de piégeage dans les aciers.

Pressouyre et Bernstein [48] ont montré l'irréversibilité d'une partie de l'hydrogène piégé dans la microstructure. Cela signifie que les atomes d'hydrogène piégés dans les défauts microstructuraux du matériau ne sont pas tous caractérisés par la même énergie de piégeage  $E_a$ , ce qui nous permet de distinguer entre pièges réversibles (faible  $E_a$ ), où les atomes d'hydrogène peuvent être facilement dépiégés, et des pièges irréversibles ( $E_a$  élevée), où les atomes d'hydrogène nécessitent d'une forte énergie pour sortir de la piège.

Wada et Sakamoto [49] ont observé, à travers la mesure de la chaleur spécifique dans une transformation de phase d'un système fer-hydrogène, que l'hydrogène est piégé sous forme gazeuse (molécules d'hydrogène) dans des micro vides à l'intérieur de la microstructure.

Hagi *et al.* [50] ont comparé la diffusivité de l'hydrogène dans une microstructure monocristalline et une polycristalline. Leurs observations amènent à la conclusion que les sites de piégeage doivent être les joints de grain.

Vucko [51] a identifié différentes énergies de piégeage, qu'il a relié à différents défauts microstructuraux. En particulier, il affirme que les dislocations et les joints de grain sont des pièges à fort énergie de piégeage, différemment des cellules de dislocations et des précipités.

Cette synthèse montre qu'il existe une grande variété de sites de piégeages. Il en ressort qu'il n'existe pas de type dominant, et les sites de piégeage de l'hydrogène dans la microstructure ne sont pas complètement établis.

La technique de TDS (Thermal Desorption Spectroscopy) peut fournir des informations telles que la densité et le type de pièges, l'énergie de piégeage, et permet de calculer les différentes quantités d'hydrogène que le matériau peut contenir (hydrogène interstitiel, ou hydrogène piégé de façon réversible ou irréversible) [52–54]. Comme montré par Escobar *et al.* dans leurs travaux [52–54], ces informations peuvent être obtenues en effectuant des mesures de désorption à différentes vitesses de chauffe. L'avantage des mesures de TDS est de révéler les sites de piégeage et de les classer d'un point de vue quantitatif et qualitatif (réversibles ou irréversibles). En fait, selon l'énergie nécessaire pour le dépiégeage, un atome d'hydrogène piégé dans un défaut peut avoir une probabilité haute ou, au contraire, très basse, de redevenir interstitiel. Le piège sera alors considéré irréversible à une température donnée lors que sa probabilité de dépiégeage est quasi nulle. Au vu des travaux réalisés sur différentes microstructures, on peut affirmer que l'énergie de piégeage dans les aciers ferritiques peut varier entre 10 et 100 kJ/mol, en fonction du type de défaut. Brass *et al.* [44], par exemple, ont identifié des valeurs d'énergie de piégeage à partir de  $E_a = 10$  kJ/mol pour les joints de grains, et à partir de  $E_a = 20$  kJ/mol pour les dislocations. Les lacunes, par contre, montrent une énergie de piégeage de l'ordre de  $E_a = 50$  kJ/mol, et les cavités peuvent atteindre  $E_a = 100$  kJ/mol, donnant lieu à un piégeage plus fort pour les atomes d'hydrogène. C'est donc dans ce cas qu'on a une probabilité accrue d'obtenir des pièges irréversibles.

Kumnick et Johnson [38,46], à partir de données expérimentales sur la perméation de l'hydrogène dans le fer alpha, ont identifié la variation des populations d'hydrogène (interstitiel et piégé) avec la déformation plastique équivalente. Sofronis et McMeeking [42] ont utilisé ces données pour proposer une relation permettant de lier la densité de pièges à la déformation plastique équivalente  $\varepsilon_p$  :

$$\log_{10} N_T = 23.26 - 2.33 * \exp(-5.5\varepsilon_p) \quad (1.8)$$

où  $N_T$  est la densité de pièges. Dans cette relation, l'augmentation de la déformation plastique équivalente  $\varepsilon_p$  entraîne l'augmentation du nombre de pièges dans le matériau. Ceci confirme l'hypothèse que les défauts microstructuraux, dont la densité augmente avec la déformation plastique, sont des sites de piégeage.

### 1.4.3 Equilibre

Si on appelle  $\theta_T$  le taux de recouvrement des sites de piégeage par des atomes d'hydrogène, et  $\theta_L$  le taux de recouvrement des sites interstitiels, alors les concentrations d'hydrogène respectives sont :

$$C_L = \theta_L N_L \quad (1.9)$$

$$C_T = \theta_T N_T \quad (1.10)$$

où  $N_L$  et  $N_T$  sont les densités de sites interstitiels et de pièges, respectivement. La concentration totale d'hydrogène sera alors la somme des deux concentrations ( $C = C_L + C_T$ ).

Oriani [39] a supposé l'existence d'un équilibre local entre les sites interstitiels et les sites de piégeage afin de traiter le problème de la diffusion. Selon cette supposition, l'énergie de piégeage  $E_a$  (Figure 1 - 5) impose la quantité d'hydrogène piégé par rapport à l'hydrogène interstitiel. L'hydrogène peut se déplacer des sites interstitiels aux sites de piégeage pour conserver l'équilibre local.

Il existe alors une constante d'équilibre des pièges,  $K_T$ , par laquelle on peut exprimer la concentration d'hydrogène piégé en fonction de la densité de pièges  $N_T$  et du taux de recouvrement des sites interstitiels  $\theta_L$  :

$$C_T = \frac{N_T}{1 + \frac{1}{K_T C_L}} \quad (1.11)$$

La constante d'équilibre  $K_T$  dépend de l'énergie de piégeage et de la température :

$$K_T = \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad (1.12)$$

Comme montré par Kumnick et Johnson [46], le nombre de sites de piégeage  $N_T$  peut être exprimé en fonction de la déformation plastique équivalente. Ceci nous permet, une fois connus la constante d'équilibre  $K_T$  et la déformation plastique équivalente, de décrire la diffusion de l'hydrogène en n'utilisant que la concentration interstitiels  $C_L$ , comme vu dans le cas de la formulation du flux d'hydrogène par Sofronis et McMeeking [42]. Il est à noter que cette théorie ne considère pas le piégeage irréversible.

Krom *et al.* [55,56] ont proposé des modifications au modèle de diffusion de Sofronis et McMeeking, pour parvenir à un équilibre d'hydrogène « correct », c'est-à-dire permettant de respecter la conservation de la masse d'hydrogène dans un volume  $V$  de surface  $S$  :

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V (C_L + C_T) dV + \int_S \mathbf{J} \cdot \mathbf{n} dS = 0 \quad (1.13)$$

où  $\partial/\partial t$  est la dérivée partielle par rapport au temps, et  $\mathbf{n}$  est la normale unitaire à la surface et  $\mathbf{J}$  est le flux d'hydrogène. Rappelons que  $C_L$  et  $C_T$  sont les concentrations d'hydrogène interstitiel et piégé.

Ces modifications apportées par Krom se basent fondamentalement sur l'ajout d'un facteur, qui dépend de la vitesse de déformation plastique. Le modèle de diffusion de Krom s'écrit :

$$\left(1 + \frac{C_T}{C_L} \left(1 - \frac{C_T}{N_T}\right)\right) \frac{\partial C_L}{\partial t} = \nabla(D_L \nabla C_L) - \nabla\left(\frac{D_L \bar{V}_H}{RT} C_L \nabla \sigma_h\right) - \theta_T \frac{\partial N_T}{\partial \varepsilon_p} \dot{\varepsilon}_p \quad (1.14)$$

où  $\bar{V}_H$  est le volume molaire partiel,  $R$  est la constante des gaz parfaits,  $T$  est la température,  $\nabla \sigma_h$  est le gradient de contrainte hydrostatique,  $\theta_T$  est le taux de recouvrement des sites de piégeage,  $\varepsilon_p$  et  $\dot{\varepsilon}_p$  sont respectivement la déformation plastique et la vitesse de déformation plastique ( $s^{-1}$ ). Le premier terme de l'équation représente le piégeage de l'hydrogène. Le deuxième et le troisième terme modélisent la diffusion contrôlée par la loi de Fick et par la contrainte hydrostatique. Le dernier terme permet de prendre en compte l'influence de la plasticité sur le piégeage de l'hydrogène.

## 1.5 Effet de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration dans les métaux

En présence d'un environnement hydrogénant (gazeux ou liquide), les interactions entre hydrogène et métal peuvent conduire à une fissuration particulièrement rapide de la structure. Ces phénomènes décrivent la fissuration assistée par l'hydrogène (en anglais « Hydrogen Assisted (ou Induced) Cracking »).

Les caractéristiques de la microstructure peuvent influencer le cheminement de la fissure et la résistance à la fissuration. La forme des grains, leur taille, la texture cristallographique, les impuretés etc. peuvent avoir un rôle important. Il est donc nécessaire de bien caractériser la microstructure du matériau avant d'analyser le phénomène de la FPH. Ceci peut se faire par microscopie optique, électronique (MEB et MET), et bien d'autres techniques. Le deuxième chapitre abordera cet aspect pour le matériau d'étude. Dans ce paragraphe on présentera l'analyse bibliographique sur l'influence de l'hydrogène sur la propagation de fissures de fatigue, afin de donner des éléments de compréhension pour l'analyse des courbes de propagation et des fractographies.

### 1.5.1 Influence de l'hydrogène sur la vitesse de propagation des fissures de fatigue

Dans la littérature, des nombreuses études sur l'influence de l'hydrogène sur la vitesse de propagation des fissures des métaux ont été menées dans les conditions d'essai les plus variés [2,57–73]. Murakami *et al.* [57,58], par exemple, ont étudié l'effet de l'hydrogène sur la propagation de fissures de fatigue sur des aciers à faible teneur de carbone, de microstructure cubique centrée, et sur des aciers inoxydables austénitiques. Ils ont chargé en hydrogène les éprouvettes soit par chargement cathodique, soit par exposition direct à haute pression d'hydrogène gazeux. Ils ont mené des essais de fatigue dans une large gamme de valeurs de fréquences cycliques et niveaux de contraintes appliquées. Ils observent une augmentation des vitesses de propagation de fissures qui dépend de la quantité d'hydrogène, de la fréquence de sollicitation, et du niveau de contraintes.

A cause de la concentration des contraintes en pointe de fissure, le flux d'atomes d'hydrogène qui pénètrent dans le matériau augmente. De plus, un chargement cyclique peut favoriser le transport de l'hydrogène par les dislocations mobiles. Saintier *et al.* [74] ont réalisé des analyses SIMS pour analyser l'interaction hydrogène-plasticité en pointe de fissure pour un acier austénitique de type 304 soumis à un chargement cyclique. Ils ont montré que la diffusion apparente en pointe de fissure est quatre ordres de grandeur plus élevée par rapport au matériau non-déformé. Ils affirment que cette diffusion élevée résulte de l'activité plastique en pointe de fissure, à cause de la mobilité des dislocations dans le chargement cyclique. Ils montrent, à l'aide des analyses SIMS, que la distance où la concentration d'hydrogène est la plus élevée est 180 fois plus grande que celle calculée par la diffusion interstitielle.

Il peut donc exister une zone, en pointe de fissure, dans laquelle l'hydrogène peut diffuser rapidement. Ceci peut causer l'augmentation des vitesses de propagation de fissures observée par des nombreux auteurs.

Drexler *et al.* [73] dans une étude sur des aciers API X70 et X80, sous 34 MPa d'hydrogène gazeux, et pour une fréquence variable entre 0.01 et 1 Hz, ont observé des vitesses de propagation de fissures de deux ordres de grandeur plus élevées par rapport aux vitesses sous air. La Figure 1 - 7a montre ces vitesses  $da/dN$ , en mm/cycle, en fonction de l'amplitude du facteur d'intensité des contraintes,  $\Delta K$ , en MPa  $\times m^{1/2}$ . L'augmentation des vitesses, dans ces conditions d'essai, ne dépend que peu de la fréquence de sollicitation cyclique.

Par contre, sous une pression d'hydrogène gazeux plus faible, de 5.5 MPa, ils observent une augmentation des vitesses de propagation d'un seul ordre de grandeur (Figure 1 - 7b). Il est important de noter que, dans les deux cas, l'augmentation des vitesses de propagations se fait à partir d'une certaine valeur de  $\Delta K$ , et que cette valeur de transition diminue légèrement avec l'augmentation de la pression.

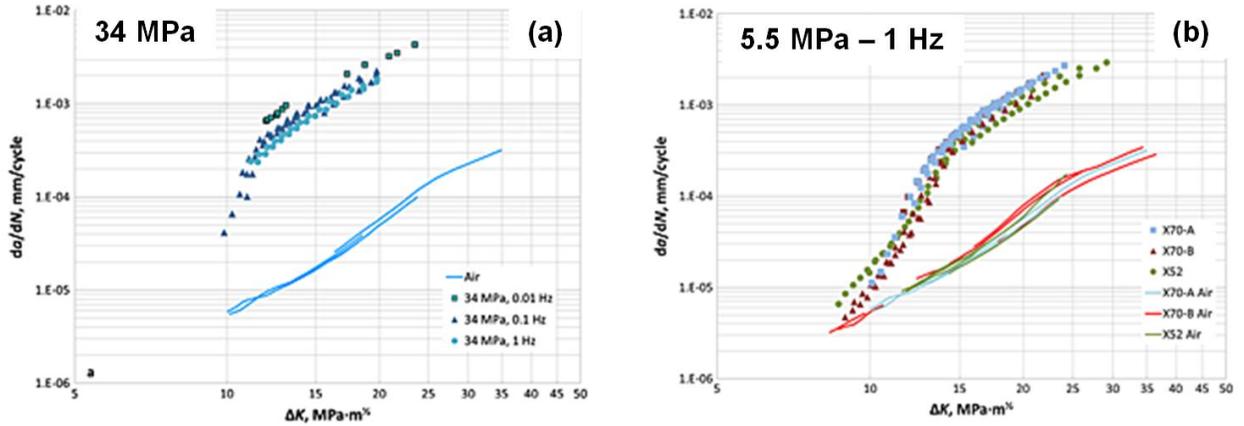


Figure 1 - 7 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures obtenues sous air et sous 34 MPa d'hydrogène gazeux à différentes fréquences pour l'acier API X70 (a), et comparaison avec les vitesses obtenues sous 5.5 MPa d'hydrogène à la fréquence de 1 Hz pour trois aciers différents (b) [73]

Sun *et al.* [69] ont montré une augmentation des vitesses de propagation sous hydrogène gazeux dans le cas d'un acier inoxydable martensitique 15-5PH, très sensible à la FPH. Ils ont montré une légère augmentation des vitesses sous 0.09 MPa d'hydrogène, et une augmentation de deux ordres de grandeur sous 9 MPa à 20Hz. Sun *et al.* [75] montrent l'influence de la fréquence sur les vitesses de propagation (Figure 1 - 8). Ils montrent qu'une réduction de la fréquence de chargement cyclique peut entraîner une augmentation des vitesses de propagation similaire à une augmentation de la pression d'hydrogène gazeux du même facteur (dans le cas spécifique, une réduction de la fréquence d'un facteur 100 permet aux vitesses de propagation de remonter vers les vitesses obtenues pour une pression 100 fois plus élevée).

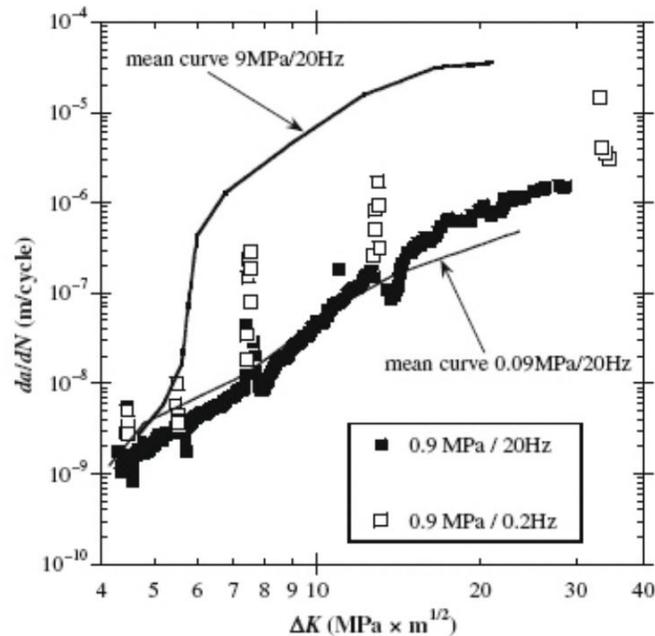


Figure 1 - 8 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures obtenues sous différentes pressions d'hydrogène gazeux (0.09, 0.9 et 9 MPa), et différentes fréquences de chargement cyclique (0.2 et 20 Hz) [69]

## 1.5.2 Influence de l'hydrogène sur les modes de rupture

L'observation des surfaces de rupture est fondamentale dans l'étude des mécanismes de FPH. En effet les modes de rupture peuvent être fortement influencés par la présence d'hydrogène en forte concentration en pointe de fissure pour les raisons évoquées précédemment.

Dans un grand nombre de travaux de la littérature, il a été montré que les surfaces de fracture changent profondément en présence d'hydrogène [2,57–73,76]. La proportion relative entre surfaces de rupture intergranulaire et transgranulaire peut changer considérablement, en fonction du matériau et des conditions d'essai (pression, température, fréquence de chargement, niveau de contrainte et déformation plastique, etc.). Beaucoup des travaux montrent des surfaces de rupture intergranulaire dans la fissuration sous hydrogène. Dans ce cas, on peut supposer que l'hydrogène peut diffuser plus facilement sur les joints de grains, où bien que la même quantité d'hydrogène soit suffisante pour rendre le joint beaucoup plus fragile par rapport aux plans cristallographiques à l'intérieur du grain. Novak *et al.* [76], par exemple, montrent des observations MEB des surfaces de fracture à l'air et en présence d'hydrogène, pour un acier AISI4340 (Figure 1 - 9a et b). Après un chargement de l'éprouvette sous hydrogène gazeux à 138 MPa, ils montrent une fracture fragile, caractérisée par une surface majoritairement intergranulaire.

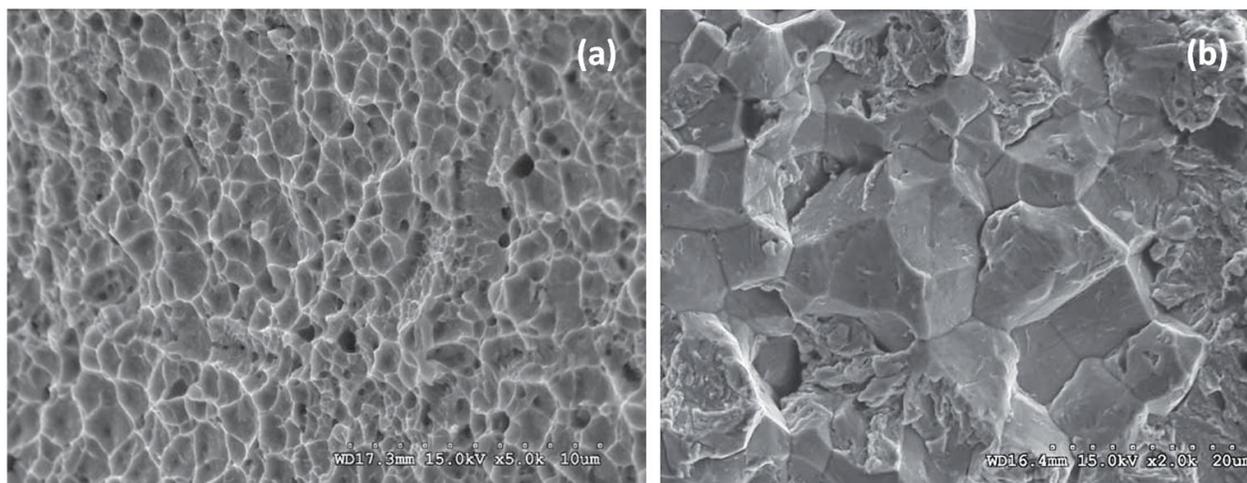


Figure 1 - 9 : Observations MEB des surfaces de fracture : on observe l'évolution d'une fissuration transgranulaire dans la propagation à l'air (a), à une propagation intergranulaire sur l'éprouvette chargée sous 138 MPa d'hydrogène (b)

Sun *et al.* [69] montrent une modification des surfaces de rupture en présence d'hydrogène sur l'acier inoxydable martensitique 15-5PH. La Figure 1 - 10 montre les observations MEB des surfaces obtenues pour l'essai sous azote et sous 9 MPa d'hydrogène gazeux. La propagation est transgranulaire ductile sous azote (Figure 1 - 10a), tandis qu'ils montrent des facettes intergranulaires sous hydrogène à faible  $\Delta K$  (Figure 1 - 10b), et une propagation transgranulaire, avec du clivage fragile et des nombreuses fissures secondaires à  $\Delta K$  plus élevé (Figure 1 - 10c).

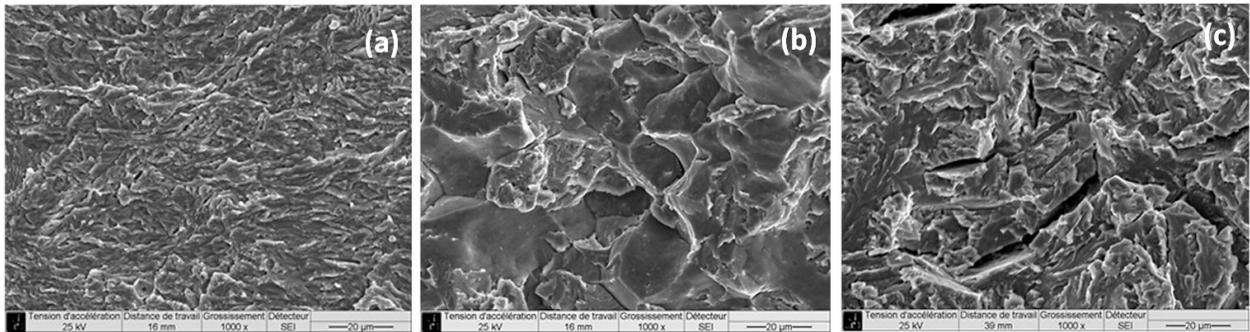


Figure 1 - 10 : Observations MEB des surfaces de fracture sur le 15-5PH : on observe l'évolution d'une fissuration transgranulaire ductile dans la propagation sous azote (a), à une propagation intergranulaire sous 138 MPa d'hydrogène gazeux à faible  $\Delta K$  (b) et une propagation transgranulaire, avec du clivage fragile et des nombreuses fissures secondaires à  $\Delta K$  plus élevé (c)

Plusieurs mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène ont été proposés, avec le but d'expliquer ce qui gouverne l'influence délétère de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques des métaux. Le prochain paragraphe analysera les principales théories issues de la littérature.

## 1.6 Mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène

Johnson [1], en 1874, a essayé d'expliquer le phénomène de la FPH en affirmant que « l'hydrogène dans le réseau atomique interdit le mouvement des atomes de fer ». Depuis, des nombreuses études ont été menées pour caractériser ce phénomène, surtout dans les derniers 50 ans, et des nombreuses théories de FPH ont été proposées.

Dans ce travail on s'intéresse à la fragilisation par l'hydrogène gazeux. Dans ce cas, la littérature tente d'expliquer la FPH en supposant l'activation de certains mécanismes de dégradation. Actuellement, les trois hypothèses les plus communément admises dans la littérature, susceptibles d'opérer dans les conditions expérimentales utilisées dans notre étude, sont :

- Le mécanisme Hydrogen-Enhanced DEcohesion (HEDE), basé sur la réduction des forces de cohésion interatomique en présence d'hydrogène, a été introduit en 1960 par Troiano [77] ;
- Le mécanisme Hydrogen-Enhanced Localized Plasticity (HELP), suggère que l'enrichissement en hydrogène en pointe de fissure facilite le mouvement des dislocations et les mécanismes de déformation plastique conduisant à la rupture du matériau. Cette théorie a été proposée par Beachem [78] en 1972 et développée par Birnbaum et Sofronis [79] ;
- Le mécanisme Adsorption-Induced Dislocation Emission (AIDE), proposé par Lynch en 1976 et développé par la suite [60,80–83], repose sur l'idée que la fragilisation est le résultat de l'augmentation de la plasticité à cause de la présence d'hydrogène en pointe de fissure, qui facilite l'émission de dislocations.

Les sous-paragaphes suivants présentent en détail ces mécanismes et les observations expérimentales qui les soutiennent.

### 1.6.1 Hydrogen-Enhanced Decohesion (HEDE)

Le concept de « décohésion » due à l'hydrogène fut introduit initialement par Pfeil [84], qui suppose que l'hydrogène réduit l'énergie de cohésion des plans de clivage et des joints de grains. Le mécanisme HEDE a été proposé par Troiano [77], puis développé par Oriani *et al.* [39,85–87]. Troiano suppose que l'hydrogène présent dans les sites interstitiels cause une dilatation du réseau atomique du matériau, en réduisant l'énergie de liaison interatomique. Dans ce modèle, l'hydrogène dissout dans le matériau diminue les forces de cohésion des plans cristallographiques, en favorisant la rupture par clivage. Ce modèle suppose, alors, une rupture fragile : lorsque les forces de cohésion deviennent plus faibles que les contraintes locales, la rupture par décohésion est favorisée par rapport au glissement des dislocations.

Pour ce faire, il doit y avoir des concentrations locales en hydrogène très élevées. C'est le cas en pointe de fissure, où la contrainte hydrostatique et la déformation plastique élevées causent une concentration d'hydrogène élevée, en particulier aux défauts et interfaces. Ceci peut expliquer à la fois la rupture fragile, par clivage, sur des plans cristallographiques à l'intérieur des grains, et la rupture intergranulaire, où l'hydrogène est concentré à l'interface entre les grains, qui agissent comme sites de piégeage.

La Figure 1 - 11 illustre les possibles zones près de la pointe de fissure où l'hydrogène peut affaiblir les liaisons interatomiques [60] : en pointe de fissure, au niveau des plans cristallographiques affaiblis par l'hydrogène (Figure 1 - 11a) ; plusieurs dizaines de nanomètres en avant de la fissures, où l'effet de barrière des dislocations entraîne une contrainte de traction maximale (Figure 1 - 11b) ; aux interfaces entre les grains ou avec des précipités, jusqu'à plusieurs micromètres en avant de la fissure (Figure 1 - 11c).

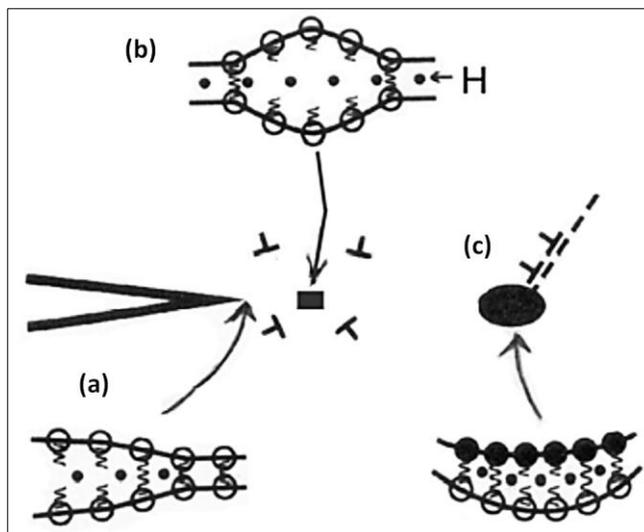


Figure 1 - 11 : Schématisation des possibles zones de fragilisation dans le mécanisme HEDE [60]: en pointe de fissure (a), plusieurs dizaines de nanomètres en avant de la fissures, où l'effet de barrière des dislocations entraîne une contrainte de traction maximale (b), ou aux interfaces entre les grains ou avec des précipités, en avant de la fissure (c)

Il est difficile d'obtenir des preuves expérimentales qui étayent le mécanisme HEDE, compte tenu des échelles concernées.

Le mécanisme HEDE peut expliquer la propagation intergranulaire en présence d'hydrogène, observée par de nombreux auteurs [61,67–69,88–92]. Dans la littérature, des concentrations d'hydrogène élevées ont été observées aux joints de grains, qui peuvent représenter d'importants sites de piégeage [50], mais, en général, ce phénomène dépend du réseau cristallographique et du type de joints de grain. La propagation intergranulaire peut être alors favorisée par des concentrations plus élevées aux joints de grain, ou alors pour une fragilisation plus importante des joints par rapport aux plans cristallins à l'intérieur du grain.

La seule observation des facettes intergranulaires n'est pas suffisante pour affirmer qu'il s'agit du mécanisme HEDE. Certains auteurs, par exemple Robertson *et al.* [88], ont observé des marquages plastiques sur les joints de grain. Lynch [60] suppose que les observations MEB des surfaces de rupture ne sont pas suffisantes pour observer ce qu'il se passe sur les surfaces intergranulaires. La présence de cupules, ou de marquages plastiques, peut montrer une activité plastique associée au phénomène de la décohésion intergranulaire.

Le mécanisme HEDE ne suppose pas seulement la propagation intergranulaire. Une propagation transgranulaire, obtenues par clivage des plans cristallographiques, peut être envisagée. Dans ce cas, la rupture se fait à l'intérieur des grains, sur les plans qui présentent une orientation plus approprié pour être affaiblie par la présence de l'hydrogène.

### **1.6.2 Hydrogen-Enhanced Localized Plasticity (HELP)**

Le mécanisme HELP a été initialement proposé par Beachem [78] sur la base d'observations microfractographiques. Il suggère que les atomes d'hydrogène dissout dans le matériau favorisent le mouvement des dislocations et une localisation de la déformation plastique. Ceci résulte en une propagation fragile à l'échelle macroscopique.

Cette idée a été reprise et développée par Birnbaum et Sofronis [79,93], qui ont mis en évidence l'augmentation de la mobilité des dislocations par l'hydrogène, en se basant sur des observations des surfaces de fracture et surtout des observations MET de déformation *in situ*. Ces auteurs affirment que, à cause d'une concentration d'hydrogène élevée en pointe de fissure, il y a une mobilité accrue des dislocations dans une zone très localisée, plus petits de la zone plastique en l'absence d'hydrogène, ce qui cause la fracture fragile. Ils ont avancé l'hypothèse que la propagation de la fissure se produit par un processus de coalescence des microcavités dans la zone de contrainte hydrostatique et de concentration d'hydrogène élevées, plus localisée que celle en environnement inerte. La Figure 1 - 12 illustre cette théorie.

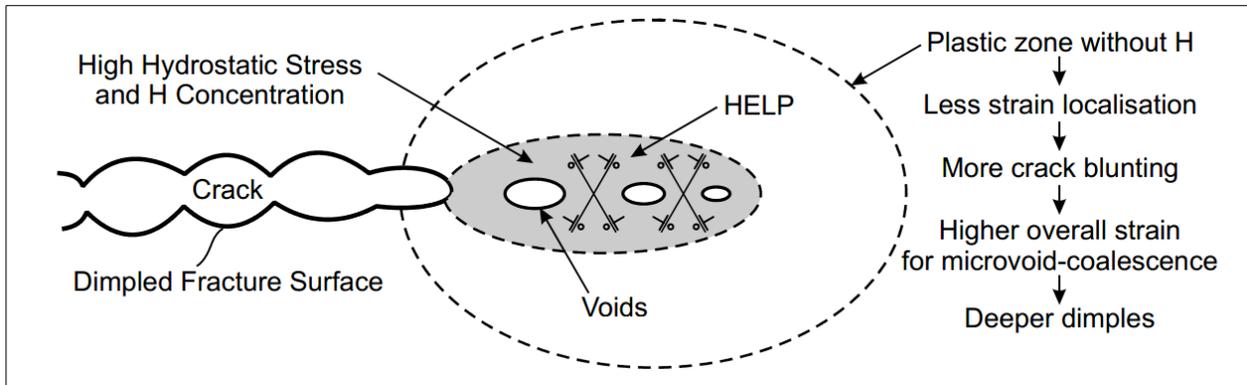


Figure 1 - 12 : Représentation du mécanisme HELP [60] : la présence d'hydrogène favorise le mouvement des dislocations et une localisation de la déformation plastique en pointe de fissure ; la propagation de la fissure se produit par un processus de coalescence des microcavités dans cette zone de contrainte hydrostatique et concentration d'hydrogène élevées

Le mécanisme HELP est basé sur la notion que les atomes d'hydrogène agissent comme des barrières élastiques pour les dislocations, ce qui réduit considérablement la force de répulsion agissant entre les dislocations sur le plan de glissement, et augmente la mobilité des dislocations. À des concentrations suffisamment élevées d'hydrogène, les dislocations peuvent s'accumuler dans des empilements denses et plus compacts.

Cet effet est étayé par des observations MET *in situ*, qui montrent l'augmentation de la mobilité des dislocations [90], et par des observations des surfaces de fracture qui montrent une localisation élevée de la déformation plastique [94].

Robertson [95], à partir des observations MET *in situ* dans un environnement hydrogéné, et avec des essais mécaniques sous hydrogène, a montré que l'hydrogène peut augmenter considérablement la mobilité des dislocations. Il affirme que ses observations sont en accord avec le modèle des barrières élastiques créées par l'hydrogène en pointe de fissure.

La rupture est fragile d'un point de vue macroscopique, et ductile d'un point de vue microscopique, à l'échelle des microcavités en pointe de fissure. Le chemin de la fissure peut être transgranulaire ou intergranulaire, en fonction de l'endroit plus favorable pour le mouvement des dislocations et la formation et coalescence des cavités. Cela peut dépendre d'une concentration locale d'hydrogène plus élevée (à l'intérieur des grains ou sur les joints des grains), ou bien d'une microstructure qui rend plus ou moins facile la fissuration sur les joints de grain.

### 1.6.3 Adsorption-Induced Dislocation Emission (AIDE)

Le mécanisme AIDE, proposé par Lynch [59,80,81,83,96,97], est avant tout basé sur l'observation et l'interprétation des surfaces de fracture produites par FPH et LME (Liquid Metal Embrittlement). L'idée principale est que les populations d'hydrogène adsorbé en pointe de fissure (sur la surface et sur quelques couches atomiques) diminuent localement l'énergie de cohésion du matériau, et facilitent ainsi la nucléation et l'émission de dislocations.

Normalement, les dislocations sont émises depuis le volume du matériau. Dans cette théorie, le terme « dislocation-emission » indique que l'hydrogène adsorbé en surface (pointe de fissure, micro vide) est à la base de la nucléation et de l'émission de dislocations, à partir de la pointe de la fissure. Ces dislocations peuvent alors se déplacer dans le réseau atomique du matériau sous une contrainte appliquée. La nucléation des dislocations implique la rupture puis la formation des liaisons interatomique en pointe de fissure, sur la surface et dans le volume, sur les premières couches atomiques. C'est donc l'affaiblissement des liaisons interatomiques en pointe de fissure qui facilite le processus de nucléation et d'émission de dislocations.

Un autre mécanisme fondamental dans l'explication de la propagation de fissures dans le modèle AIDE est la nucléation et croissance de microcavités en avant de la pointe de la fissure. A cause de la contrainte très élevée, il existe une intense activité plastique en pointe de fissure, qui participe à la formation des cavités, et contribue à la propagation de la fissure.

Les mécanismes décrits sont illustrés dans la Figure 1 - 13.

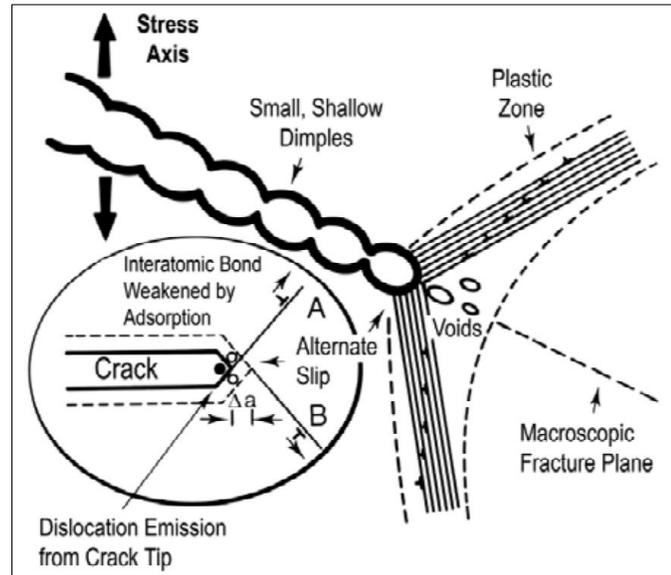


Figure 1 - 13 : Représentation du mécanisme AIDE [60] : la fragilisation est composée de deux étapes : diminution locale de l'énergie de cohésion du matériau, qui facilite la nucléation et l'émission de dislocations à partir de la pointe de la fissure ; nucléation et croissance de microcavités en avant de la pointe de la fissure

Lynch affirme que l'émission de dislocations depuis le volume dans un environnement inerte cause un émoussement plus important de la pointe de la fissure, menant à une rupture ductile. La coalescence des cavités résulte en la formation de grandes cupules, à l'intérieur desquelles on trouve une population de cupules plus petites (Figure 1 - 14).

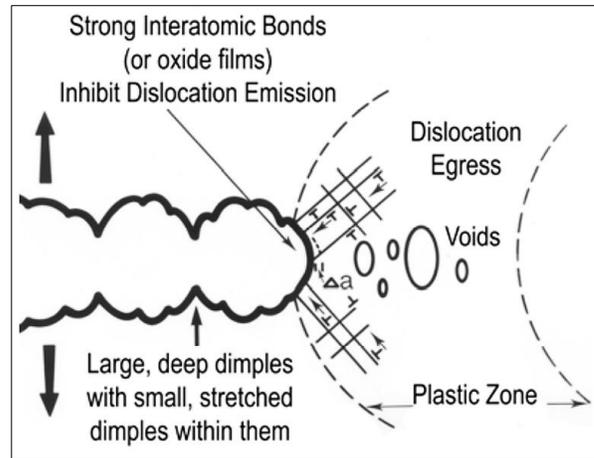


Figure 1 - 14 : Illustration de la propagation ductile de la fissure [60] : l'émission de dislocation depuis la pointe de la fissure est inhibée, ce qui produit l'érouissage ; la coalescence des cavités résulte dans l'apparition des cupules sur la surface de rupture

Lorsque l'adsorption d'hydrogène affaiblit les liaisons interatomiques et favorise l'émission de dislocations en pointe de fissure, l'activité plastique conduit à la propagation de la fissure, qui se fait sur les plans de glissement des dislocations (propagation fragile). La coalescence de la fissure avec les cavités se produit à une déformation plus faible, et des petites cupules sont produites sur la surface de rupture.

Dans le mécanisme AIDE le chemin de la fissure peut être transgranulaire ou intergranulaire, en fonction des zones où se produisent l'émission de dislocations et la formation des microcavités.

Ce modèle est conforté par des calculs atomiques de la propagation de fissure dans le nickel, qui indiquent que l'hydrogène adsorbé en pointe de fissure facilite l'émission de dislocations, à condition que les plans de glissement soient favorablement orientés par rapport au plan de la fissure [98,99]. Lynch affirme qu'il est possible de décrire différents modèles de fragilisation-corrosion avec la seule théorie AIDE [82].

### 1.6.4 Bilan sur les mécanismes de FPH

Les théories de type HEDE et HELP reposent sur des hypothèses différentes. En ce qui concerne le mécanisme HEDE, il n'y a aucune preuve directe de l'affaiblissement des forces de cohésion interatomiques dû à la ségrégation de l'hydrogène. L'évidence du mécanisme HELP, qui attribue la fragilisation à l'hydrogène localisé en pointe de fissure, qui favorise le mouvement des dislocations, a été montrée au moyen d'observations microscopiques de la pointe de fissure et des surfaces de rupture, ou des observations MET *in situ*. Hélas, ce mécanisme ne peut pas expliquer certaines observations expérimentales, par exemple dans le cas de propagation très fragile, avec des vitesses très élevées, le mécanisme HELP ne peut pas expliquer les observations des surfaces de rupture. La localisation de la plasticité ne peut pas produire le changement d'une fracture ductile à une fracture pour clivage fragile, sans accumulation de la plasticité en pointe de fissure (qui correspond plutôt au mécanisme HEDE). Le mécanisme AIDE reprend les éléments

principaux des modèles HEDE et HELP, mais suppose, en plus, que les phénomènes de décohésion et de localisation de la plasticité interviennent près de la surface, plus exactement en fond de fissure, et non pas dans le volume du matériau. Plusieurs auteurs affirment que la FPH est très probablement due à une combinaison de ces différents mécanismes, et non pas à un seul d'entre eux [55,60,100]. Le mécanisme dominant dépend des conditions expérimentales, c'est-à-dire que les mécanismes de fragilisation peuvent changer en fonction de la microstructure, des modes de glissement, de la valeur du facteur d'intensité des contraintes, et de la température. Il est donc nécessaire d'analyser chaque cas pour identifier le mécanisme prépondérant.

Améliorer la compréhension des mécanismes d'endommagement sous haute pression d'hydrogène gazeux, en apportant des arguments en faveur ou contre les hypothèses communément rencontrées dans la littérature, constitue un des objectifs principaux du travail de thèse. Pour cela, on utilisera un dispositif conçu à l'Institut Pprime pour réaliser des essais de propagation de fissures de fatigue sous haute pression d'hydrogène gazeux. Les but est de corrélérer les variations des vitesses de propagation de fissures en présence d'hydrogène aux modifications des modes de rupture constatées sur les fractographies à fort grossissement. Auparavant cette étude s'est révélée complexe sur des aciers fortement alliés, avec des microstructures complexes. Le choix d'un matériau de microstructure simple et qui présente une bonne affinité avec l'hydrogène, nous donne la possibilité d'analyser plus aisément les mécanismes de HAC.

L'interaction entre hydrogène et défauts microstructuraux doit être considérée comme un facteur fondamental pour comprendre et décrire le phénomène de la FPH [78,101–103]. Nous analyserons le rôle de l'état de déformation sur la solubilité apparente de l'hydrogène pour accéder aux énergies de piégeage. Ces dernières mesures peuvent être corrélées avec les observations MET de lames minces (permettant d'évaluer la taille des cellules et la densité de dislocations) afin de décrire plus finement l'interaction entre l'hydrogène et ces défauts. Cette analyse nous permettra d'obtenir des éléments d'interprétation quantitatifs sur les différents processus impliqués dans la perte de résistance à la fissuration sous hydrogène.

Un objectif complémentaire à l'analyse expérimentale est le développement d'un modèle numérique capable de prendre en compte la perte de résistance à la fissuration en présence d'hydrogène. Il s'agit d'un modèle de zone cohésive avec une loi de traction - séparation spécifique, capable de réduire l'énergie de cohésion en présence d'hydrogène, et adaptée au chargement cyclique. D'un point de vue plus fondamental, ce modèle nous donne l'opportunité de comprendre quel est le rôle de l'hydrogène dans la modification des mécanismes d'endommagement en pointe de fissure.

La prochaine partie de ce manuscrit présente les résultats de l'étude expérimentale de la fissuration assistée par l'hydrogène dans le fer Armco. Elle s'articule en trois chapitres, concernant le choix du matériau, les résultats des essais de fissuration sous hydrogène, et l'analyse de l'interaction hydrogène-plasticité.



## **II Analyse de la FPH: étude expérimentale de la propagation de fissures de fatigue et de l'interaction hydrogène-plasticité**

Cette partie présente les étapes de l'étude des mécanismes de fragilisation par hydrogène dans le fer Armco, de microstructure ferritique. Elle s'articule en trois chapitres.

Le premier chapitre s'attardera sur la caractérisation mécanique et chimique du matériau d'étude. Il s'agit du fer pur, de microstructure ferritique, utilisé comme matériau « modèle ». En premier lieu on présentera les motivations du choix de ce matériau, et le traitement thermique choisi ainsi que l'analyse de la microstructure. Les résultats des essais de traction sont présentés, et les propriétés mécaniques détaillées.

Le second chapitre présentera les essais de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux. Les résultats des essais de fissuration sous différentes atmosphères sont présentés et analysés en parallèle avec les observations des surfaces de rupture au MEB, qui nous permet d'identifier le changement des modes de rupture.

Le chapitre suivant présentera l'étude de compréhension des interactions « hydrogène-plasticité ». Le travail se décompose en plusieurs tâches : des essais oligocycliques sont réalisés pour produire différentes structures de déformation ; le dosage de l'hydrogène permet d'accéder aux énergies de piégeage de l'hydrogène et aux concentrations d'hydrogène piégé dans le matériau pour différentes amplitudes de déformation et taux de déformation plastique cumulée ; des observations au MET conduites sur des lames minces permettent d'analyser le rôle de l'état de déformation sur la solubilité apparente de l'hydrogène afin d'obtenir des éléments d'interprétation sur les changements de mécanismes en pointe de fissure conduisant à la rupture. Des mesures de perméation électrochimiques ont été réalisées afin de déterminer le coefficient de diffusion réticulaire de l'hydrogène  $D_L$ .



## Chapitre 2

### Choix du matériau et propriétés mécaniques

#### 2.1 Matériau d'étude

Dans un premier temps nous présentons le choix du matériau d'étude, ses caractéristiques, ainsi que le traitement thermique appliqué et l'analyse de la microstructure.

##### 2.1.1 Choix du matériau et caractéristiques générales

Les critères les plus importants dans le choix du matériau d'étude sont une microstructure simple et une bonne affinité avec l'hydrogène, qui nous donnent la possibilité d'analyser les mécanismes de fragilisation par hydrogène. Le matériau choisi pour cette étude est le fer Armco (également appelé fer pur), de microstructure ferritique. Ce matériau est facilement déformable, il a une microstructure simple, et le comportement de l'hydrogène au sein du matériau est assez connu dans la littérature [92,102–106]. Le fer pur, grâce à sa microstructure ferritique simple, devrait nous permettre d'analyser le rôle de l'état de déformation sur la solubilité apparente de l'hydrogène et accéder aux énergies de piégeage, afin d'obtenir des éléments d'interprétation quantitatifs sur les changements de mécanismes en pointe de fissure conduisant à la rupture. Le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans le fer pur est relativement élevé par rapport à d'autres aciers [102,106], ce qui permet d'identifier facilement les effets de l'interaction entre matériau et hydrogène.

La composition chimique des impuretés du matériau étudié, mesurée par le fabricant AK Steel, est présentée dans le Tableau 2 - 1. Le matériau est reçu sous la forme d'une tôle laminée à chaud d'épaisseur égale à 20 mm et de dimensions 1000x2000 mm.

Composition chimique, %											
C	Mn	P	S	Cu	N	Si	Al	Cr	Mo	Ni	Sn
0.001	0.050	0.003	0.003	0.009	0.0035	0.004	0.005	0.015	0.002	0.14	0.002

Tableau 2 - 1 : Composition chimique des impuretés du fer Armco, mesurée par le fabricant AK Steel

Les propriétés mécaniques annoncées par le fabricant sont :

- Limite d'élasticité  $R_{P0,2} = 182$  MPa ;
- Dureté = 71 HB ;
- Elongation à rupture  $A = 52\%$ .

## 2.1.2 Traitement thermique

Des éprouvettes de fatigue oligocyclique et de fissuration doivent être réalisées à partir de la plaque de matériau. Les tôles reçues n'ont pas été recuites après laminage. C'est la raison qui nous amène à étudier l'influence d'un traitement thermique de recuit (ou revenu) sur le matériau avant l'usinage des éprouvettes. Les effets du traitement thermique seront observés sur la microstructure et sur la dureté du matériau sur trois plans correspondants aux trois directions principales. La Figure 2 - 1 présente les trois directions, à savoir : épaisseur (C), transverse (T) et longitudinale (L), qui correspond à la direction de laminage.

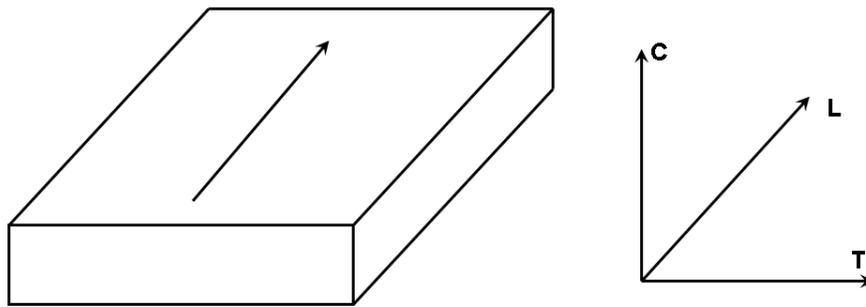


Figure 2 - 1 : Schéma de la plaque laminée et indication des trois directions, épaisseur (C), transverse (T) et longitudinale (L)

La Figure 2 - 2a montre une micrographie du matériau à l'état de réception, dans le plan CL, au centre de la plaque. Nous n'observons aucune élongation des grains dans la direction du laminage (gauche-droite). Cependant les grains sont hétérogènes avec des dimensions très variables. La Figure 2 - 2b montre la présence de gros grains sur la surface de la tôle. Il sera par conséquent nécessaire d'éviter que les éprouvettes soient prélevées dans ces zones de forte hétérogénéité.

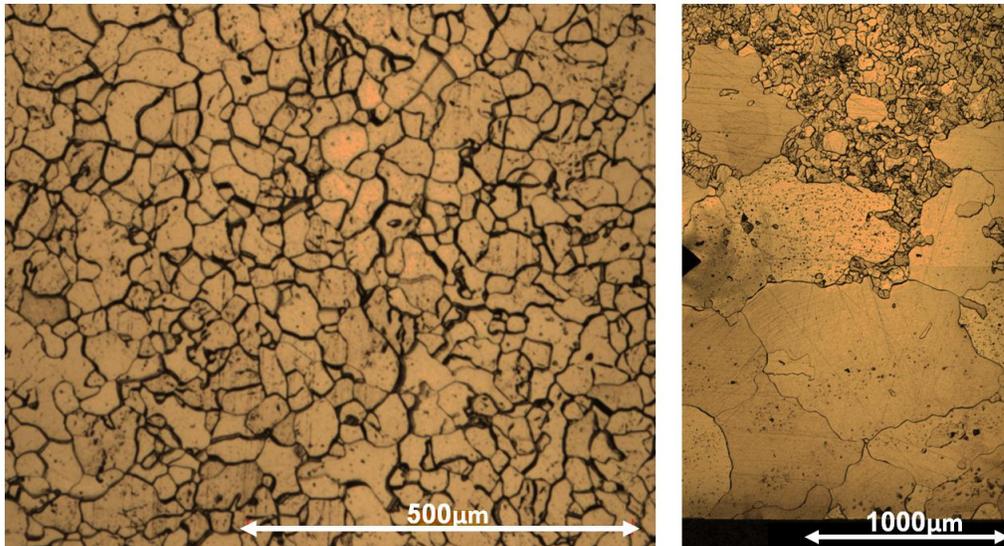


Figure 2 - 2 : Micrographie du fer Armco dans la direction de l'épaisseur (a) et présence de gros grains sur la surface (b)

Le fer Armco doit être soumis à un traitement thermique de recuit. Ce traitement est utilisé pour l'atténuation ou la relaxation des contraintes résiduelles pouvant exister à la suite du laminage, et pour homogénéiser la microstructure (taille et structure des grains). Il s'agit d'un chauffage uniforme de la structure à une température appropriée en dessous de la plage de transformation ( $Ac1 = 723 \text{ °C}$  pour les aciers ferritiques), maintien à cette température pendant une période de temps prédéterminée, suivi d'un refroidissement uniforme et lent [107]. Si on dépasse la température  $Ac1$ , le matériau subit une recristallisation, qui peut être plus ou moins importante en fonction de la température choisie et du temps de maintien.

Un premier traitement thermique (nommé TT1) a été choisi afin d'obtenir une structure uniforme avec légère recristallisation :

- 60 minutes à  $800 \text{ °C}$  (plus élevé que  $Ac1$ ,  $723\text{°C}$ ) ;
- Refroidissement  $1 \text{ °C/min}$  jusqu'à température ambiante.

En raison de l'inertie thermique du four, et de l'épaisseur des tôles, il faut considérer une réduction de la température et du temps de maintien. Un deuxième traitement thermique (TT2) a par conséquent été choisi :

- 90 minutes à  $830 \text{ °C}$
- Refroidissement  $1 \text{ °C/min}$  jusqu'à température ambiante.

En suivant les valeurs de la température de consigne et de celle mesurée par un thermocouple à l'intérieur de l'enceinte du four, nous observons une réduction de la température et du temps de maintien au sein du four. Le traitement thermique TT2 est celui qui s'approche le plus du traitement souhaité, avec un temps d'environ 60 minutes à une température d'environ  $810 \text{ °C}$  (Figure 2 - 3).

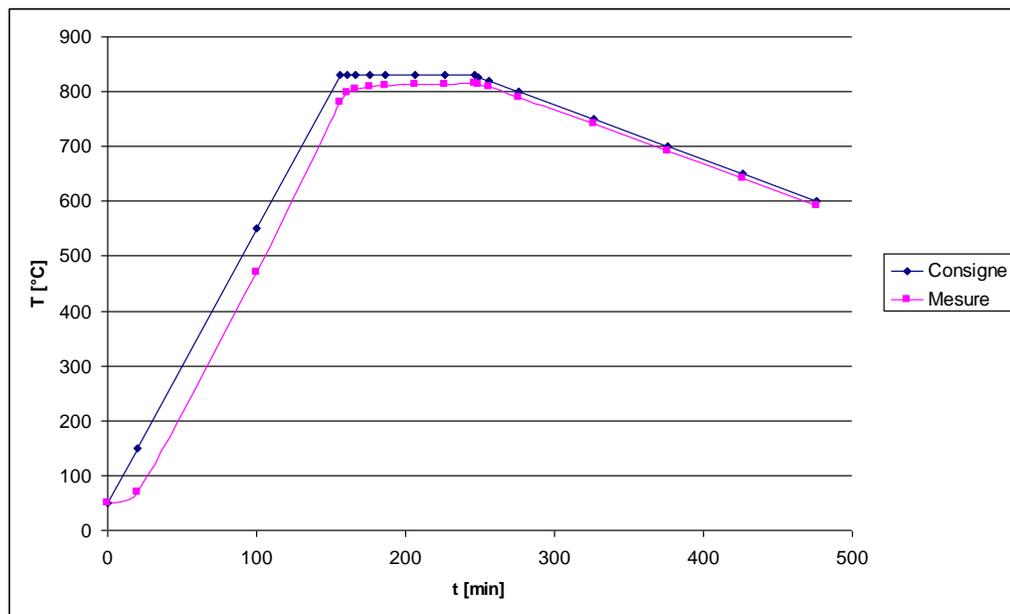


Figure 2 - 3 : Traitement thermique TT2 : température de consigne et température mesurée dans l'enceinte du four

Les échantillons sur lesquels nous avons commencé la série d'analyse de microstructure et de mesures de dureté sont de trois types:

- échantillon de référence (Ref) : il s'agit du matériau reçu après laminage ;
- traitement thermique 1 (TT1) ;
- traitement thermique 2 (TT2).

La microstructure a été étudiée via l'analyse d'échantillons prélevés dans les trois directions principales. Ceux-ci ont été polis mécaniquement jusqu'au grade 1  $\mu\text{m}$ , puis attaqués pendant 4 secondes dans une solution de Nital à 4 % (solution d'éthanol avec 4 % volumique d'acide nitrique) à température ambiante [108].

Les observations en microscopie optique révèlent une microstructure plus uniforme avec une légère augmentation de la taille des grains après traitement thermique, signe de la relaxation de l'anisotropie microstructurale initiale, due au laminage des tôles. La Figure 2 - 4 montre les observations sur les différents plans. Le traitement thermique 2, en particulier, fournit les images les plus uniformes sur les trois plans, et avec une épaisseur des bords de grains homogène et réduit par rapport à l'état de référence.

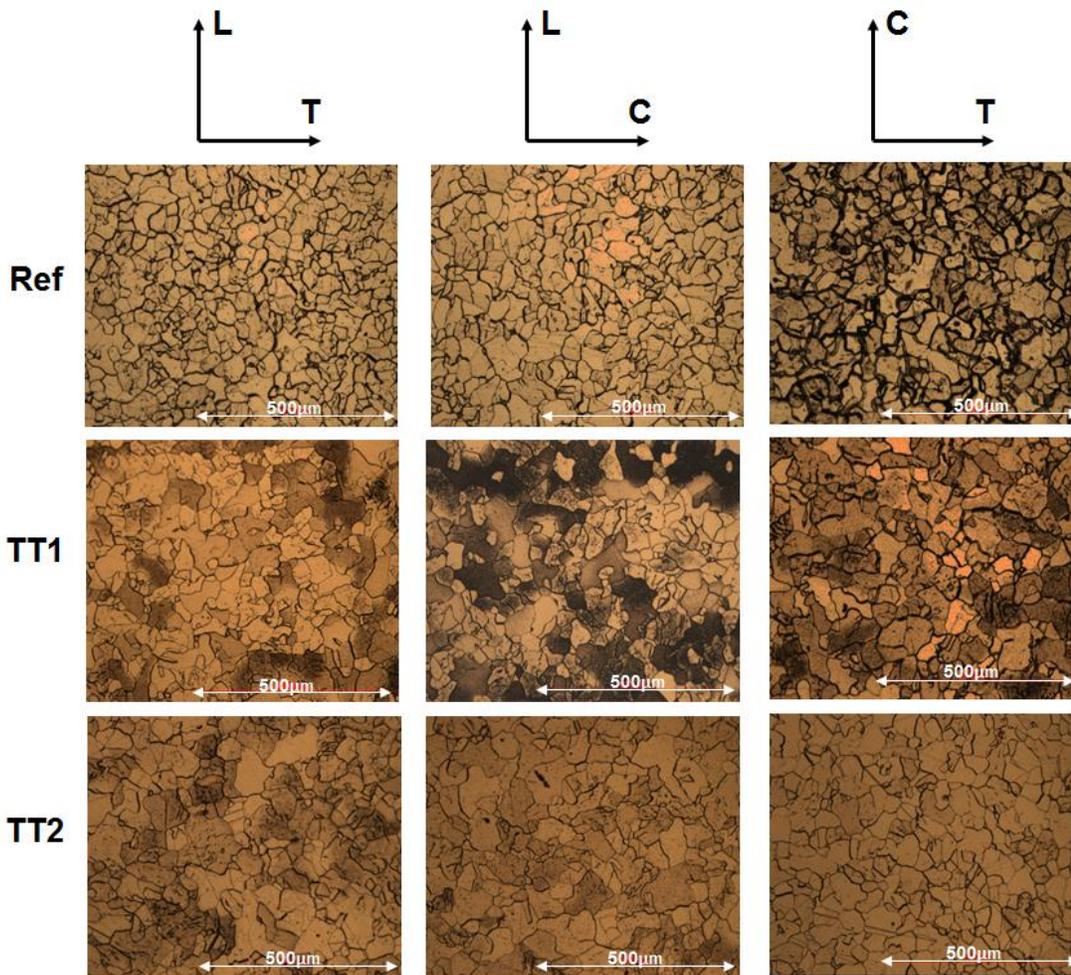


Figure 2 - 4 : Observations de la microstructure sur les trois plans pour les trois échantillons

Même si le traitement thermique a permis d'obtenir une microstructure plus homogène, une couche comportant des grains de grande taille a été observée sur la peau de la tôle. La Figure 2 - 5 montre une réduction importante de ces grains, avec une épaisseur moyenne qui passe de plus d'un millimètre à environ 0.6 et 0.4mm avec les deux traitements thermiques.

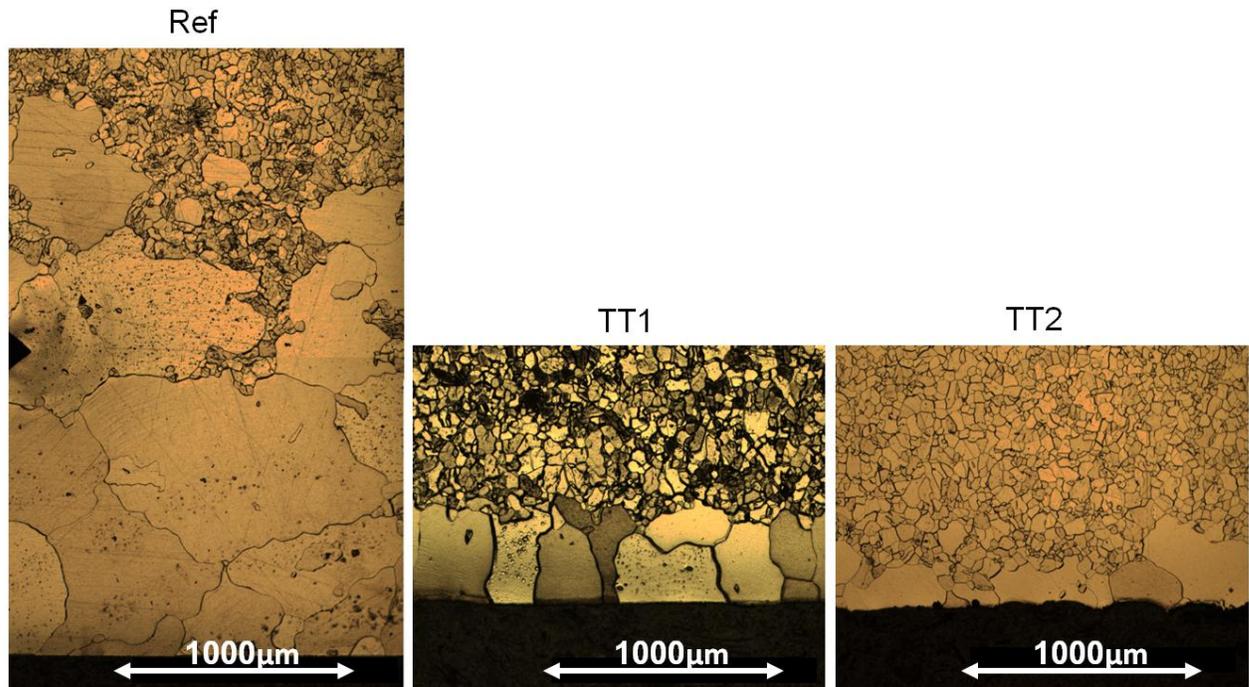


Figure 2 - 5 : Evolution des hétérogénéités sur la surface de la tôle en fonction du traitement thermique

Afin d'évaluer l'homogénéité du matériau avant et après les traitements thermiques, nous étudions l'évolution de la dureté du matériau. Une série de trois mesures de dureté a été effectuée dans chaque plan de la tôle. Elle fournit des valeurs quantitatives sur l'homogénéité de la microstructure et donc sur la qualité du traitement thermique.

La Figure 2 - 6 et le Tableau 2 - 2 présentent le calcul de la dureté sur les trois plans et l'écart type sur la mesure. Trois mesures sur chaque plan de chaque échantillon ont été réalisées, avec une force de 200 N. On observe une variation importante de la dureté dans l'échantillon de référence suivant le plan considéré. De plus, l'écart type au sein d'un même plan et entre les différents plans est le plus élevé. Les mesures après traitement thermique montrent des écarts plus modérés par rapport à l'état de référence. Le traitement thermique 2, en particulier, montre la meilleure régularité de mesure sur les trois plans. La taille moyenne des empreintes est  $d = 0.732$  mm, ce qui correspond à une valeur de dureté d'environ 70 HV, similaire aux valeurs reportées dans la littérature pour le fer Armco après recuit [109]. Compte tenu de ces observations, nous choisissons le traitement thermique 2 comme traitement de recuit standard pour toutes les éprouvettes que nous réaliserons dans cette étude.

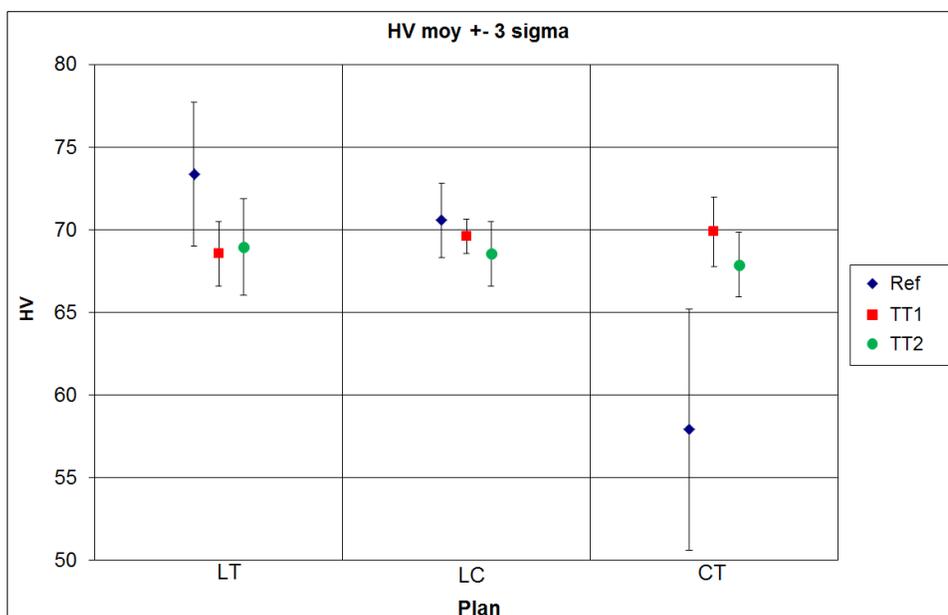


Figure 2 - 6 : Mesures de dureté sur les trois plans (LT, LC, CT) pour les trois échantillons (Ref, TT1, TT2), avec barres de dispersion

Plan	REF		TT1		TT2	
	HV	$\sigma$	HV	$\sigma$	HV	$\sigma$
LT	73.37	1.45	67.67	0.40	68.97	0.97
LC	70.57	0.75	69.60	0.35	68.53	0.65
CT	57.90	2.42	69.23	2.05	67.87	0.65
<b>moyenne</b>	<b>67.28</b>	<b>7.29</b>	<b>68.83</b>	<b>1.38</b>	<b>68.46</b>	<b>0.82</b>

Tableau 2 - 2 : Mesures de dureté et sur les trois plans, et écart type

Afin de limiter les effets d’hétérogénéité microstructurale, les éprouvettes seront prélevées dans le cœur des plaques. Pour les éprouvettes de fatigue oligocyclique (longueur utile 20 mm, diamètre 8 mm), l’axe de symétrie a été choisi dans la direction longitudinale. Pour les éprouvettes CT (W=40 mm, épaisseur 8 mm) l’axe de chargement a été choisi parallèle à la direction longitudinale et la direction de propagation de la fissure sera par conséquent transversale à la direction de laminage.

### 2.1.3 Microstructure

Une fois choisi le traitement thermique, il s’avère nécessaire de conduire une analyse plus approfondie de la microstructure, en particulier de son uniformité. Pour ce faire, on mesure la taille des grains et on observe leur forme et leur homogénéité dans les différentes directions.

Comme montré au paragraphe précédent, des observations après polissage et attaque chimique au Nital permettent de faire ressortir la microstructure.

Dans la littérature, des nombreux articles expliquent comment calculer la taille moyenne des grains à partir de la norme ASTM E112 [110,111]. La méthode des interceptes est une méthode

de détermination de la taille de grain qui permet rapidement un calcul approximatif à partir des images de la microstructure. La Figure 2 - 7 montre un exemple d'images au microscope Zeiss à un grossissement 100x, et la méthode des interceptes utilisée pour le calcul de la taille de grain : des lignes sont tracées dans deux directions perpendiculaires, et la taille de grain est estimée à partir de la longueur totale de ces lignes et du nombre total d'intersection avec les joints de grain. Afin d'avoir une bonne estimation il faut au moins 50 intersections avec les joints de grain sur la longueur totale des lignes tracées dans chaque direction.

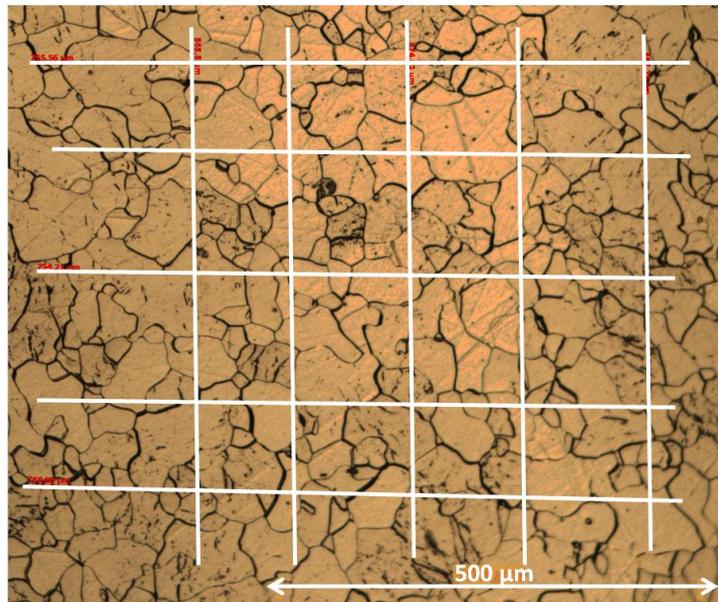


Figure 2 - 7 : Méthode des interceptes utilisé pour le calcul de la taille de grain

Les valeurs calculées avec cette méthode sont approximatives, de l'ordre de 55-60 μm pour les deux traitements thermiques, de 40 à 60 μm pour l'état de référence (après laminage), avec, dans ce dernier cas, des mesures moins homogènes, et des différences importantes entre les différents plans. Afin d'obtenir des valeurs plus précises, une analyse au MEB équipé d'un détecteur EBSD (Electron BackScatter Diffraction) a été réalisée pour le matériau qui a subit le traitement thermique TT2. Sont particulièrement examinés la distribution de taille de grains, la texture cristallographique ainsi que le caractère des joints de grains. Pour réaliser cette analyse il a fallu prélever un échantillon du cœur de la tôle, et réaliser un polissage jusqu'au grade 1 μm, suivi d'un polissage électrochimique pour faire ressortir la microstructure.

La cartographie montrée en Figure 2 - 8 établie à partir d'un nombre de grains suffisant donne une valeur plus précise de la taille moyenne des grains après le traitement thermique de l'ordre de 90 μm. Cette mesure donne également la distribution de la taille des grains, plutôt homogène pour le matériau analysé, ce qui nous montre que le traitement thermique de recuit a donné de bons résultats pour l'homogénéisation de la microstructure, avec une légère recristallisation. Dans la cartographie EBSD, chaque couleur représente la direction z de l'échantillon (ND) par rapport au repère du cristal déterminée par le triangle standard (figure de pôle inverse).

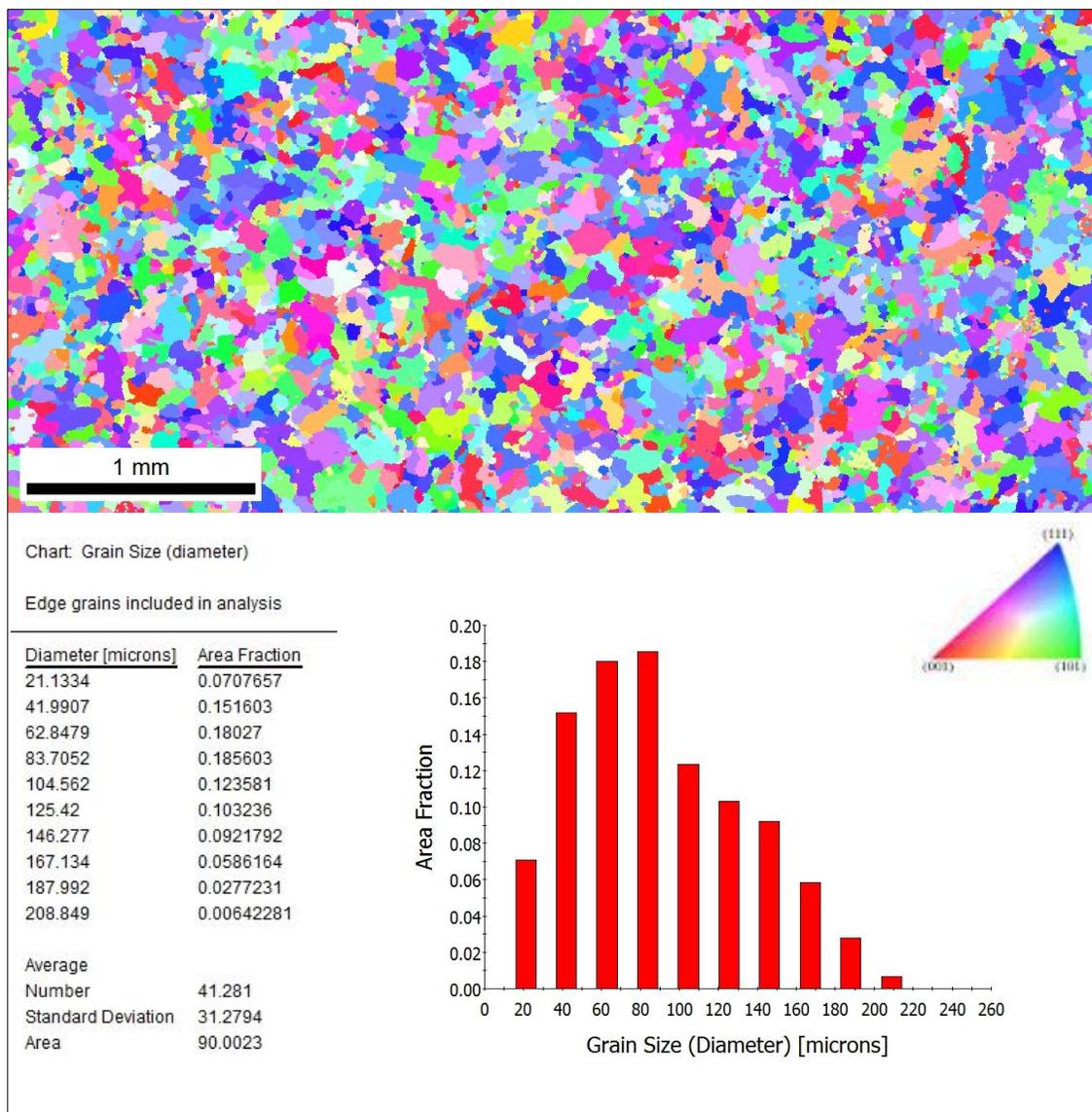


Figure 2 - 8 : Cartographie EBSD de la microstructure, avec la distribution de la taille des grains

La texture cristallographique est montrée dans la Figure 2 - 9. Elle est recalculée selon trois familles de plans (111), (200), (110). Cela peut être comparé avec les observations de Holscher *et al.* [112] qui ont analysé la texture cristallographique d'un acier à faible teneur de carbone laminé à froid (Figure 2 - 10). Ces auteurs observent une valeur maximale supérieure à 4, contre environ 2 dans notre cas. On peut conclure que dans notre matériau, après le traitement thermique, une texture peu marquée du laminage (fibre  $\alpha$  et fibre  $\gamma$ ) est présente avec des composantes classiques pour une structure cubique centrée.

Le résultat obtenu avec le traitement thermique choisi (TT2) pourra être encore amélioré dans le futur, afin d'augmenter le taux d'indexation surtout sur le matériau déformé.

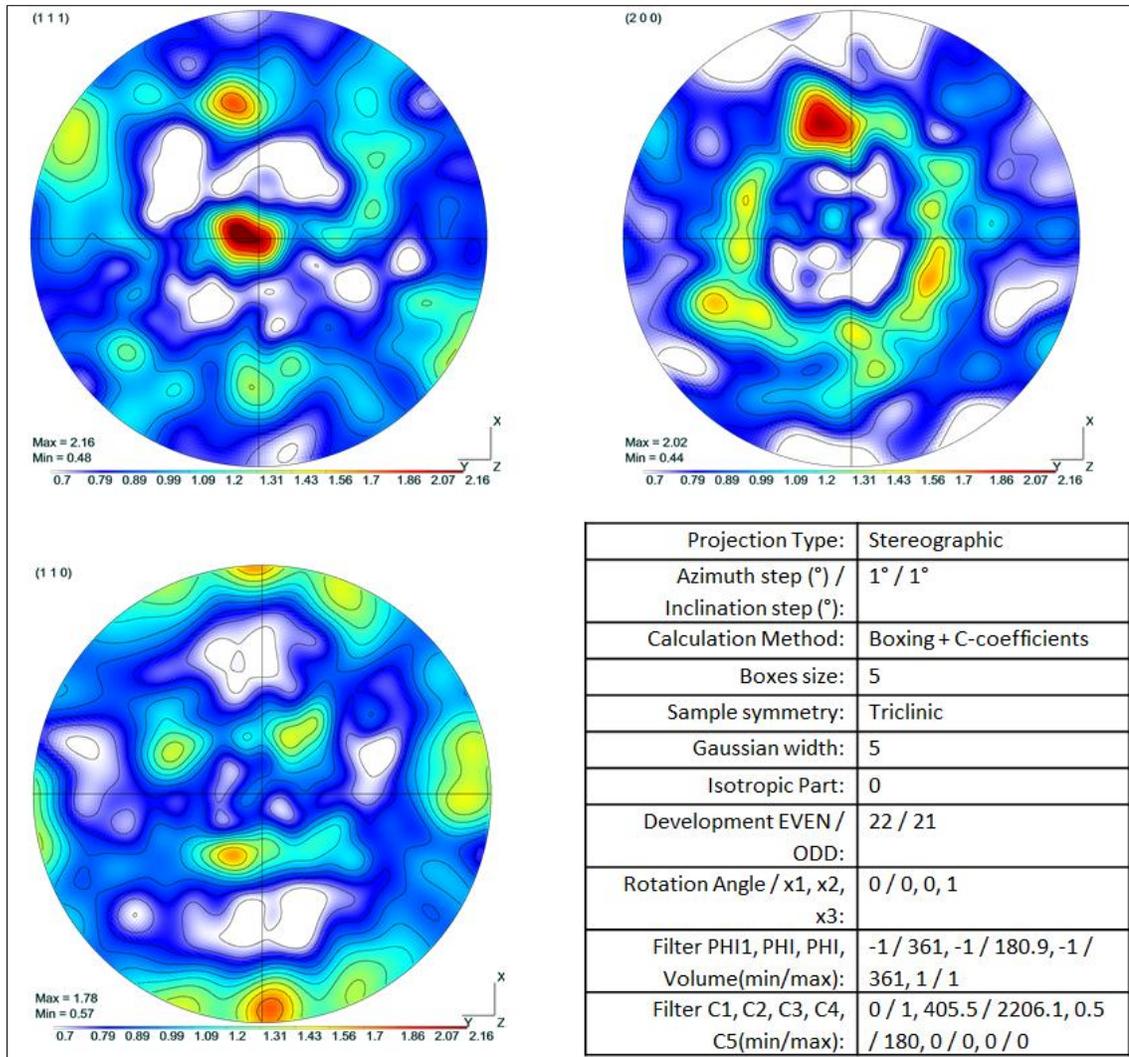


Figure 2 - 9 : Texture cristallographique sur trois plans différents (image réalisée avec JTEX [113])

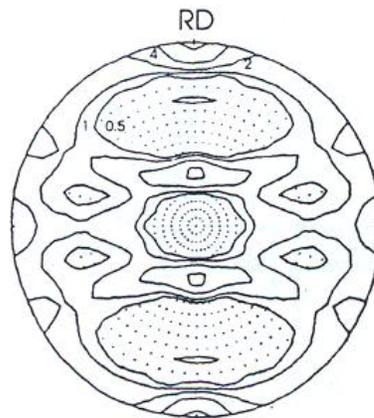


Figure 2 - 10 : Texture cristallographique d'un acier à faible teneur de carbone, laminé à froid [112]

La Figure 2 - 11 montre les caractères des joints de grains. La majorité des joints présente une désorientation de plus de 15°.

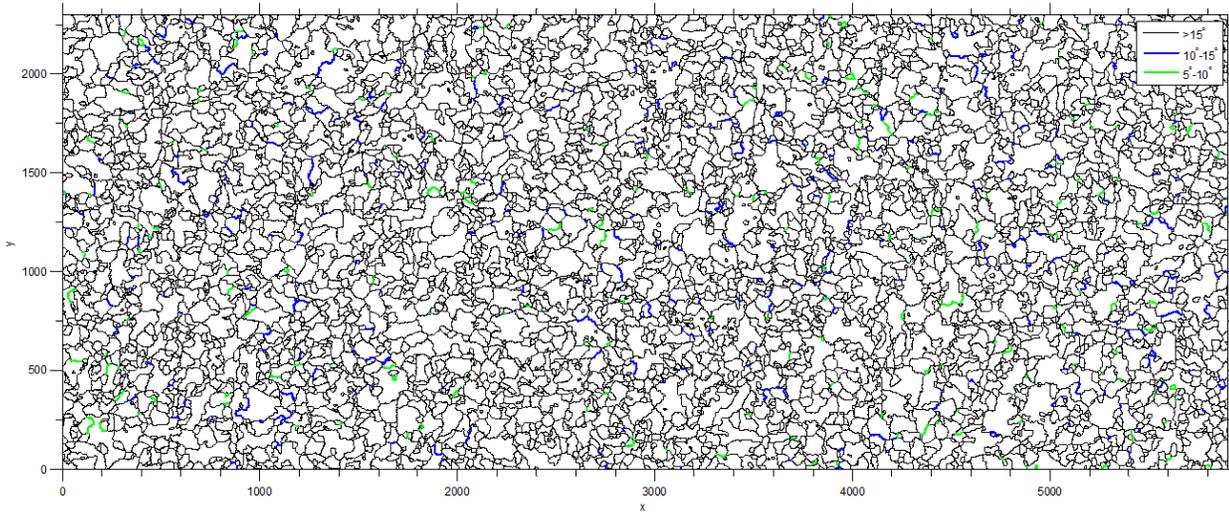


Figure 2 - 11 : Caractères des joints de grains (image réalisée avec MTEX [114])

Dans ce cas, les joints de grain sont définis à travers le « Coincidence Site Lattice » (CSL) [115], pour lequel à chaque joint est assigné un «  $\Sigma$  », qui indique le type de joint de grain. La Figure 2 - 12 montre le type de joints de grains. On observe très peu de joints spéciaux, plutôt aléatoires.

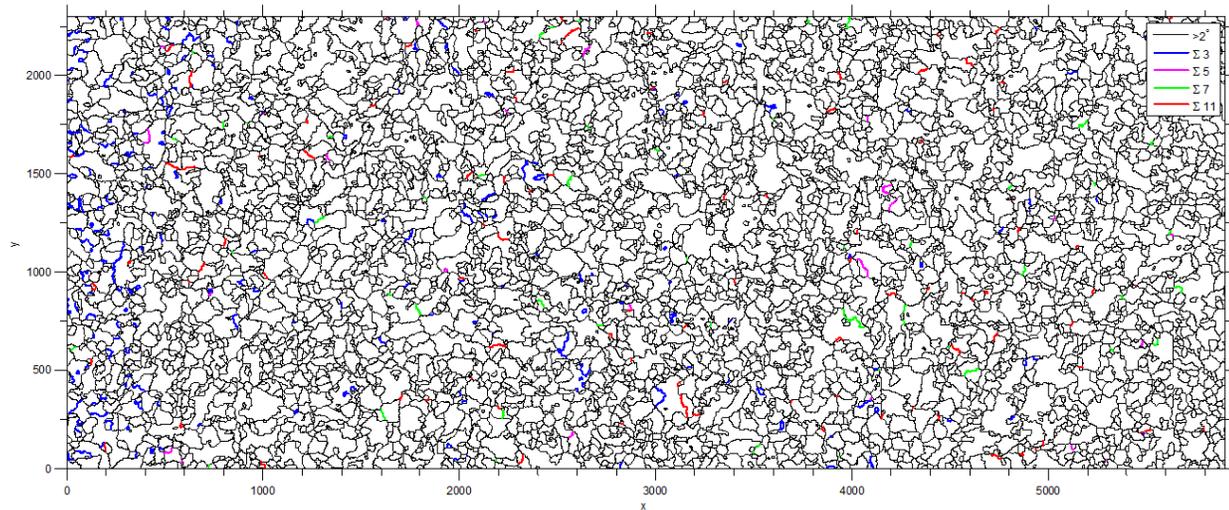


Figure 2 - 12 : Type de joint de grains

Le fer pur analysé montre alors des joints de grains généraux, distribués de manière aléatoire dans le volume. Oudriss *et al.* [116] ont montré, pour le nickel polycristallin, que ce type de joints de grains représente le chemin de diffusivité le plus élevé. La connaissance du type de joints de grain, associée à l'analyse de l'interaction hydrogène-plasticité, nous permettra d'approfondir la discussion sur les différents mécanismes de fissuration en présence d'hydrogène, et en particulier, le passage à une propagation intergranulaire sous hydrogène à faible chargement, et le retour à une propagation transgranulaire de caractère fragile sous un chargement élevé.

## 2.2 Essais de traction

L'essai de traction est un essai qui permet de mesurer plusieurs propriétés mécaniques d'un matériau. L'essai de traction reproduit une sollicitation simple, donc souvent éloignée des sollicitations réelles, mais facilement maîtrisable et reproductible.

### 2.2.1 Banc d'essai

La machine de fatigue électromécanique Instron 1362 permet d'effectuer des essais de traction et de fatigue à faible nombre de cycles sur des matériaux métalliques homogènes chargés de façon uniaxiale. Elle permet de réaliser des essais à l'air, sous vide ou à haute température. La capacité maximale de la cellule est de 50 kN, tandis que la fréquence maximale est de 1 Hz.

Le système informatique permet de piloter l'essai depuis l'ordinateur et d'acquérir les données de manière automatisée. Les logiciels d'essai LCF® et WaveMatrix® apportent la structure nécessaire pour réaliser différents essais dynamiques et de fatigue. LCF® (Low Cycle Fatigue), en particulier, fournit un programme d'essai robuste pour réaliser des essais de traction et des essais de fatigue à faible nombre de cycles.

Deux différents extensomètres sont utilisés pour les mesures de déformation :

- L'extensomètre 1 (de type 406), de base 10 mm et capacité  $\pm 1$  mm (déformation maximale  $\pm 10\%$ ) sera utilisé pour les essais de comportement cyclique (Figure 2 - 13) ;
- L'extensomètre 2, avec partie utile 12.5 mm et capacité  $\pm 5$  mm (déformation maximale  $\pm 40\%$ ), sera utilisé pour les essais de traction.

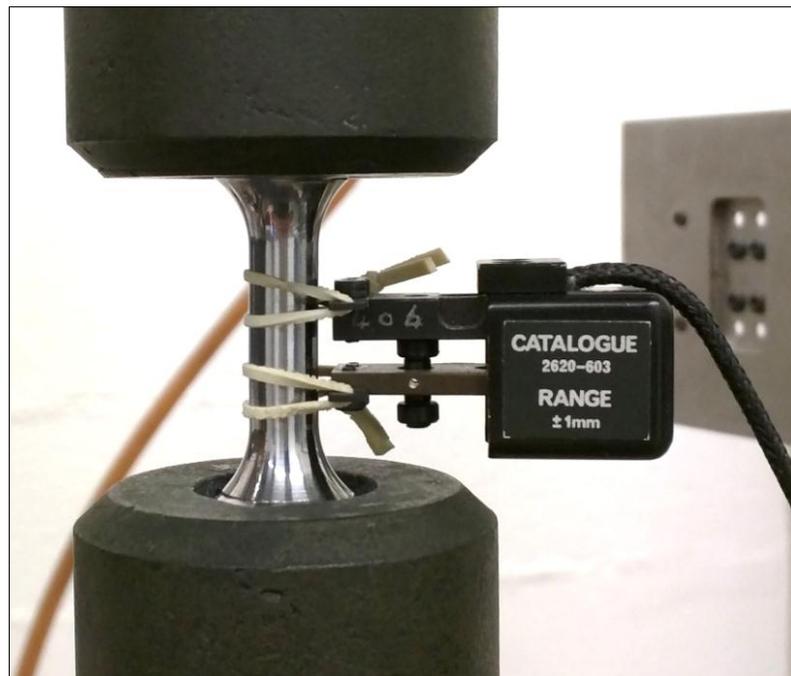


Figure 2 - 13 : Extensomètre de base 10 mm et capacité  $\pm 1$  mm, utilisé pour les essais de comportement cyclique

## 2.2.2 Eprouvettes de traction et de fatigue oligocyclique

Les éprouvettes ont été prélevées au cœur de la tôle laminée après le traitement thermique de recuit, et dans la direction longitudinale (sens de laminage).

La géométrie des éprouvettes d'essai en fatigue à faible nombre de cycles peut varier en fonction du type d'essai à exécuter et du type de mâchoires, tiges de traction et autre dispositif de positionnement d'éprouvette fixés sur le système d'essai. Nous réaliserons des essais en traction-compression. Un élément important est alors de prévenir le flambement lors du passage en compression. Une autre raison importante dans le choix de la géométrie des éprouvettes est ici d'avoir une taille suffisante pour réaliser les découpes des parallélépipèdes pour le dosage d'hydrogène et les mesures de perméation électrochimique, et les lames minces pour les observations au MET.

Le schéma en Figure 2 - 14 illustre la géométrie des éprouvettes oligocycliques choisies, caractérisées par une partie utile cylindrique, de diamètre 8 mm et longueur utile 20 mm (Figure 2 - 14). Des cylindres de matière sont prélevés dans la tôle, et les éprouvettes sont obtenues par tournage après la réalisation des filets aux extrémités (pour éviter d'induire un écrouissage par torsion).

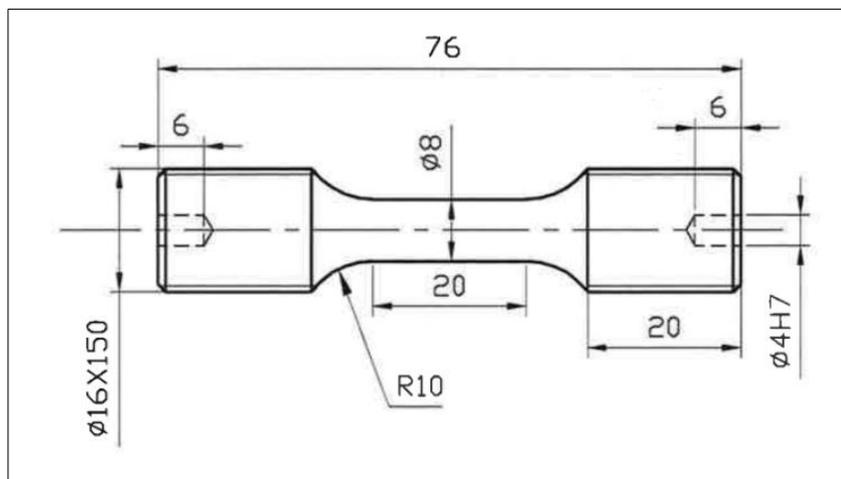


Figure 2 - 14 : Géométrie des éprouvettes oligocycliques

Un premier test de fatigue plastique en amplitude de déformation totale imposée, avec augmentation progressive de l'amplitude de déformation jusqu'à  $\Delta\varepsilon_t = 3\%$  ( $\Delta\varepsilon_t / 2 = \pm 1.5\%$ ) a permis de valider la géométrie par rapport au risque de flambement. Les déformations atteintes au cours de la campagne d'essais seront moins élevées, avec une amplitude de déformation maximale de  $\Delta\varepsilon = 1.6\%$ .

### 2.2.3 Procédure expérimentale

Les essais de traction sont conduits à température ambiante et à l'air. Les déformations sont mesurées par l'extensomètre 2 (base 12.5) placé sur la partie utile de l'éprouvette. Ces essais sont conduits suivant la norme ASTM E8/E8M-13: "Standard Test Methods for Tension Testing of Metallic Materials" (2013) [117].

Les éprouvettes utilisées pour l'essai de traction ont été polies jusqu'au grade 4000, avec le dernier polissage dans la direction longitudinale de l'éprouvette, afin d'éviter un amorçage précoce.

Différents types de colle ont été testés pendant la campagne d'essais pour créer des points de fixation pour l'extensomètre. La résine époxy bi-composant, qui devrait permettre une bonne adhérence des couteaux de l'extensomètre sans endommager la surface de l'éprouvette, s'est révélée peu adaptée. En effet, les couteaux glissaient lentement par rapport à l'éprouvette avec un effet visqueux, et ce dernier se superposait à la déformation de la partie utile de l'éprouvette.

L'utilisation d'une colle céramique n'apporte pas quant à elle d'avantage par rapport à l'utilisation sans points de colle. En effet, un test en déformation imposée jusqu'à rupture a montré l'absence de glissements de l'extensomètre et un nombre de cycles à rupture similaire. Les essais seront donc réalisés sans l'utilisation de colle pour les couteaux.

### 2.2.4 Résultats de traction

L'objectif de l'essai de traction est d'analyser le comportement du matériau soumis à un chargement uniaxial et d'en extraire des informations clés du matériau, tels que le module d'Young  $E$ , la limite d'élasticité  $\sigma_y$ , la résistance à la traction  $\sigma_m$ , l'allongement à la rupture  $\epsilon_r$ , le coefficient de Poisson  $\nu$ . Cet essai consiste à placer une éprouvette entre les mors de la machine de traction et appliquer un déplacement des mors à une vitesse constante, jusqu'à la rupture. On enregistre la déformation (au moyen de l'extensomètre 2) et la charge appliquée.

Trois différentes vitesses de déformation ont été testées : 0.01%/s, 0.1%/s et 1%/s. Les courbes de traction sont montrées dans la Figure 2 - 15. Il s'agit de la courbe rationnelle, qui tient compte de la modification des dimensions de l'éprouvette : la déformation est calculée à partir de la mesure de l'extensomètre comme  $\ln(L/L_0)$ , et la contrainte est calculée comme le rapport entre la force mesurée par la cellule de charge et l'aire de la section actuelle (calculé à partir de l'allongement de l'éprouvette).

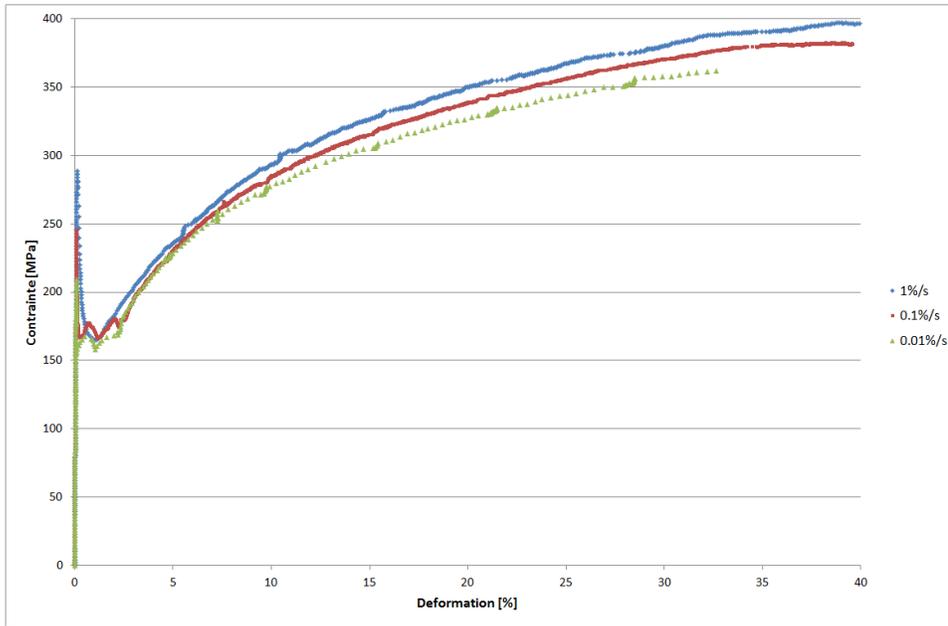


Figure 2 - 15 : Courbes de traction pour les trois vitesses de déformation

Nous observons la présence d'un pic à la fin de la partie élastique. Bailon et Dorlot [118] ont étudié l'évolution de la courbe de traction d'un fer Armco avec 0.02% en poids de carbone pour différentes tailles de grain et différents traitements thermiques de recristallisation. Ils ont observé un pic à la fin de la partie élastique pour une taille de grain plus petite (22  $\mu\text{m}$ ). Ce pic se réduit jusqu'à disparaître pour des tailles de grain plus importantes. Dans notre cas, pour un fer Armco de composition légèrement différente (pour ce matériau cela joue énormément) nous observons un pic même pour une taille de grain de 90  $\mu\text{m}$ .

Nous observons que l'intensité du pic augmente avec la vitesse de déformation (Figure 2 - 16).

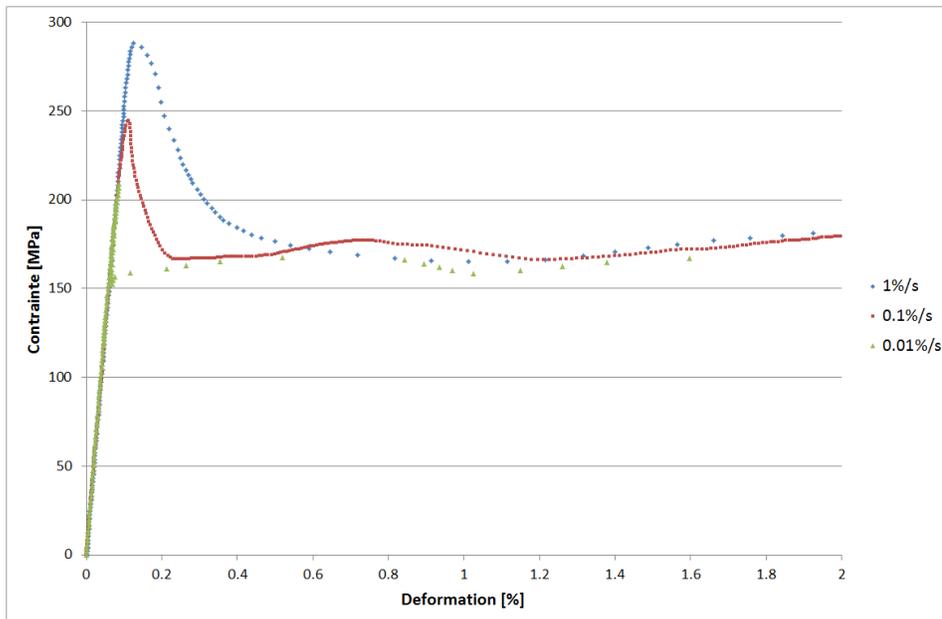


Figure 2 - 16 : Evolution du pic de contrainte avec la vitesse de déformation

L'évolution de ce pic avec la vitesse de déformation est montrée dans le Tableau 2 - 3 en termes de contrainte maximale et de déformation au pic.

Vitesse de déformation	$\sigma_{\max}$ [MPa]	$\epsilon$ [%]
0.01 %/s	210	0.09
0.1 %/s	245	0.11
1 %/s	290	0.13

Tableau 2 - 3 : Valeurs des pics de contrainte pour différentes vitesses de déformation

Dans les trois cas, le pic est suivi d'un palier avec des petites oscillations allant jusqu'à environ 2% de déformation. On définit la limite d'élasticité  $\sigma_y$  comme la valeur de la contrainte au palier après le pic. Nous pouvons observer une valeur similaire dans les trois cas, autour de 170 MPa. A partir de ce point la courbe de traction monte jusqu'à un maximum de contrainte, défini comme la résistance à la traction  $\sigma_m$  ou limite à la rupture (Tableau 2 - 4). Cette valeur est atteinte pour environ la même valeur de déformation totale  $\epsilon_r$ , et augmente légèrement avec la vitesse de déformation.

Vitesse de déformation	$\sigma_y$ [MPa]	$\sigma_m$ [MPa]	$\epsilon_r$ [%]
0.01%/s	170	350	25
0.1%/s		360	
1%/s		370	

Tableau 2 - 4 : Valeurs de limite d'élasticité, de résistance à la traction et de déformation maximale pour différentes vitesses de déformation

Plusieurs modèles ont été établis pour prédire les lois de comportement des métaux. Depuis longtemps, Zener et Hollomon [119] ont montré que le logarithme de la contrainte d'écoulement est une fonction linéaire du logarithme du paramètre de Zener-Hollomon, qui dépend de la vitesse de déformation  $\dot{\epsilon}$  et de la température :

$$Z = \dot{\epsilon} * e^{\frac{Q}{RT}} \quad (2.1)$$

où  $Q$  représente l'énergie d'activation pour l'écoulement plastique,  $R$  est la constante universelle des gaz parfaits, et  $T$  est la température. Ceci peut expliquer l'évolution des courbes en fonction de la vitesse de déformation. Armstrong et Walley [120] ont montré que pour les métaux avec microstructure cubique centré, la limite d'élasticité et la charge maximale atteints pendant le test augmentent avec la vitesse de déformation.

Ensuite, après le maximum de contrainte, la déformation se concentre dans une zone, dite de striction (Figure 2 - 17a). La déformation plastique atteinte lors de l'essai de traction est très importante pour ce matériau. Nous n'avons pas observé les facies de rupture au microscope électronique à balayage, mais elles présentent une forme typique en V (Figure 2 - 17b). La fracture est de type « cup-cone » avec direction de rupture d'environ 45° par rapport à l'axe de traction. Il s'agit d'un mode de rupture typique pour des matériaux ductile [121–123]. On peut remarquer aussi une activité plastique importante sur la surface de l'éprouvette.

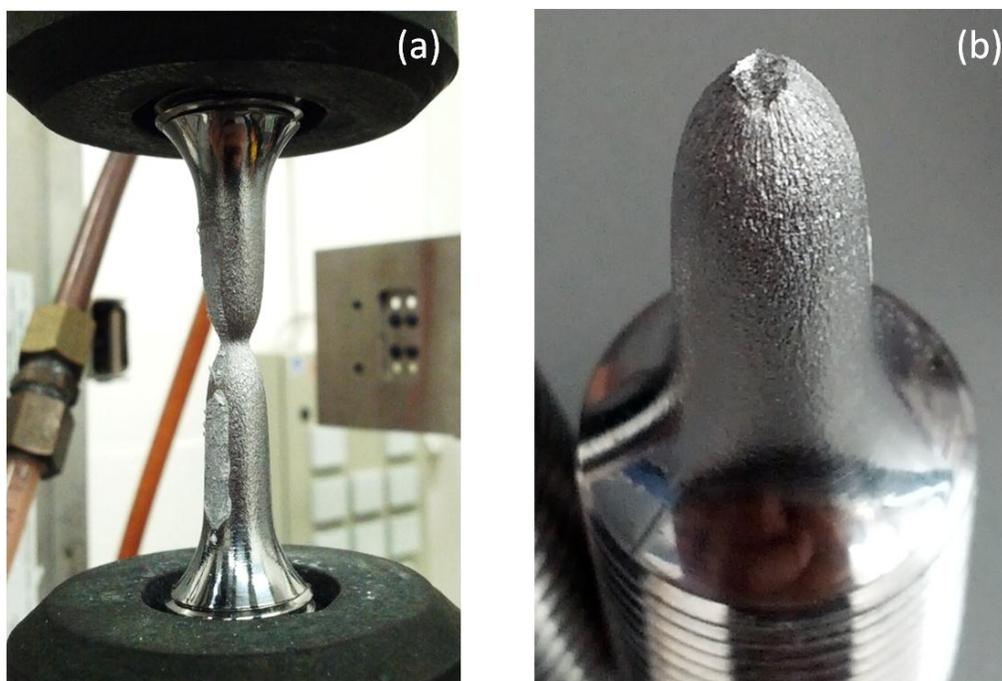


Figure 2 - 17 : Point de striction après le maximum de contrainte (a), et surface de rupture (b)

## Chapitre 3

# Essais de propagation de fissures de fatigue sous haute pression d'hydrogène gazeux

Dans le chapitre précédent nous avons présenté la caractérisation mécanique et chimique du matériau d'étude, à savoir le Fer ARMCO. Nous avons discuté les motivations du choix de ce matériau, et montré le traitement thermique choisi ainsi que l'analyse de la microstructure et les résultats des essais de traction. L'objectif de ce chapitre est d'analyser l'effet de l'hydrogène gazeux sur la propagation de fissures de fatigue dans ce matériau.

### 3.1 Techniques expérimentales

#### 3.1.1 Procédure (ASTM E647)

La norme ASTM E647 [124] fournit la procédure expérimentale à suivre pour le déroulement correct d'un essai de fissuration. Cette procédure implique notamment d'appliquer des chargements cycliques sur des éprouvettes pré-entallées et convenablement pré-fissurées. Les vitesses de propagation de fissures sont exprimées en fonction de l'amplitude du facteur d'intensité de contrainte  $\Delta K$ , qui est calculé à partir d'expressions basées sur la théorie de la mécanique linéaire élastique de la rupture (MELR).

Les éprouvettes utilisées pour les essais de fatigue sont des éprouvettes Compact Tension (CT) dont les dimensions sont imposées par la norme ASTM E647 à partir de la largeur  $W$  et de l'épaisseur  $B$  (Figure 3 - 1).

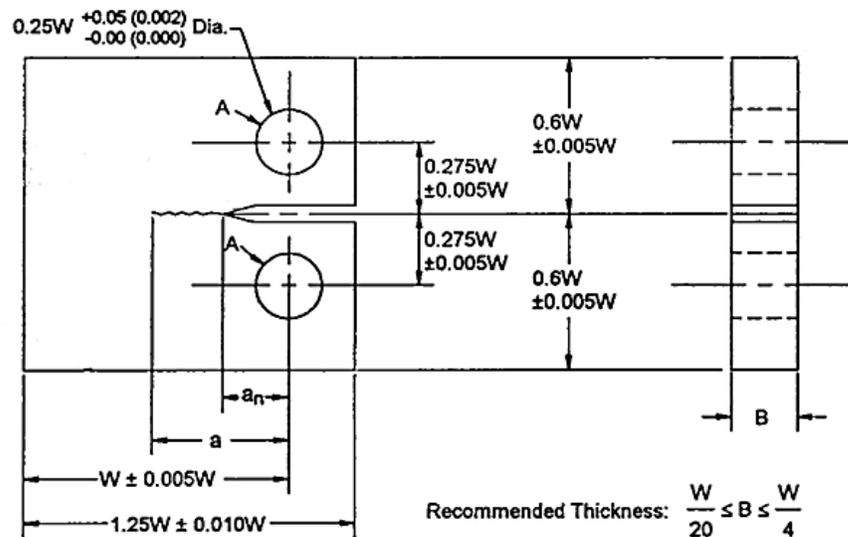


Figure 3 - 1 : Schéma d'une éprouvette Compact Tension (CT) utilisée dans cette étude, et ses dimensions définies par la norme ASTM E647 à partir de  $W$  et  $B$

Dans notre cas, les dimensions  $W = 40 \text{ mm}$  et  $B = 8 \text{ mm}$  ont été choisies. Ces dimensions sont celles retenues pour le banc d'essai Hycomat qui sera utilisé pour les essais sous hautes pressions d'hydrogène.

L'avancement de la fissure s'exprime comme le rapport entre la longueur de fissure  $a$  et la dimension  $W$  (définies en Figure 3 - 1). La vitesse de propagation sera exprimée en mètre par cycle ou mètre par seconde. La valeur du facteur d'intensité de contrainte  $\Delta K$  est calculée à partir de la charge imposée, des dimensions de l'éprouvette et de la longueur de la fissure actuelle :

$$\Delta K = \frac{\Delta P}{b\sqrt{W}} * \alpha \quad (3.1)$$

$\alpha$  est une fonction de  $a/W$  valide pour les éprouvettes CT pour  $a/W \geq 0.2$  ([125,126]) :

$$\alpha = \frac{(2 + a/W)}{(1 - a/W)^2} (0.886 + 4.64 a/W - 13.32(a/w)^2 + 14.72(a/w)^3 - 5.6(a/w)^4) \quad (3.2)$$

La norme permet ainsi de réaliser des essais dans lesquels la courbe de propagation de fissure de fatigue ( $\frac{da}{dN}$  en fonction de  $\Delta K$ ) est indépendante de la géométrie de l'éprouvette. Les données générées à l'aide de cette méthode d'essai seront utilisées dans cette étude pour établir, en termes quantitatifs, l'effet de différents environnements (en particulier l'hydrogène gazeux) sur la croissance de fissures de fatigue.

Les possibles orientations de prélèvement des éprouvettes dans la tôle de matériau sont représentées en Figure 3 - 2. La première lettre correspond à la direction du chargement et la seconde à la direction de propagation de la fissure. En considérant la direction de prélèvement LT par exemple, les éprouvettes ont été prélevées afin que la direction de propagation de la fissure soit perpendiculaire à la direction de laminage. Un essai préliminaire sur une éprouvette prélevée dans la direction TL a montré des vitesses de propagation sous air équivalentes à celles de l'éprouvette LT. Ceci est une confirmation supplémentaire de la qualité du traitement thermique réalisé.

Toutes les éprouvettes dans la suite seront prélevées avec une orientation LT.

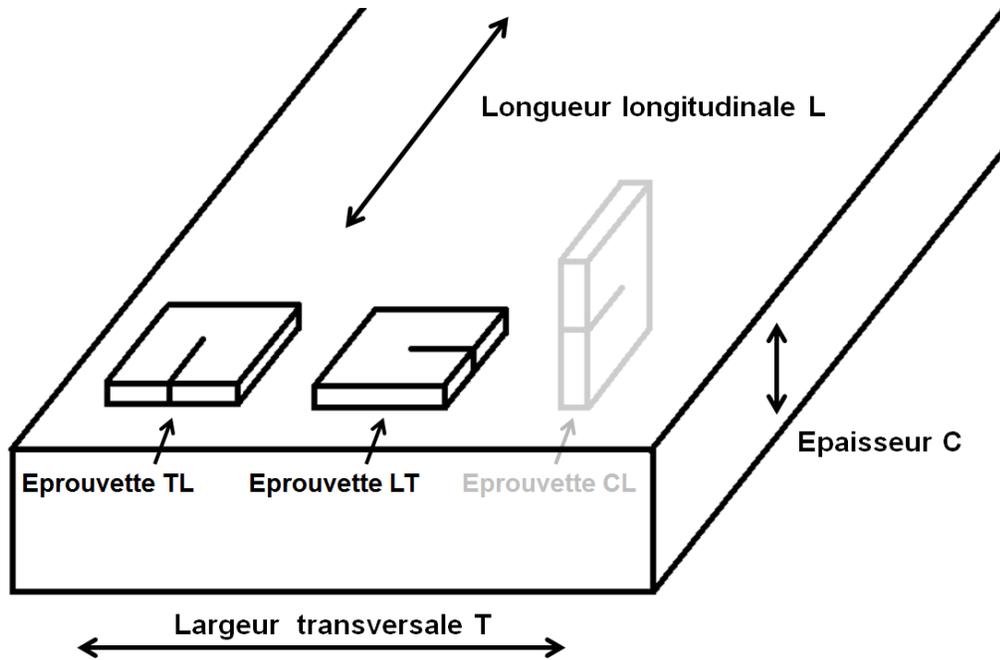


Figure 3 - 2 : Direction de prélèvement des éprouvettes CT dans la tôle laminée après recuit

Les éprouvettes ont été polies après usinage jusqu'au grade 1  $\mu\text{m}$  afin d'avoir une finition de haute qualité (très faible rugosité), et pouvoir observer l'avancement de la fissure avec un microscope optique à longues distances de travail, qui, dans le cas de Hycomat, est un Questar. La préfissuration est réalisée à l'air et à température ambiante, et l'avancement de la fissure est suivi optiquement. La norme ASTM E647 établit des limites de l'intervalle des valeurs de  $a/W$  pour lesquelles les valeurs des vitesses de propagation sont « fiables », c'est-à-dire qu'elles peuvent être comparées à d'autres résultats obtenus dans le même intervalle sous différentes conditions d'essai (par exemple sous hydrogène).

La valeur de  $a/W$  initiale est atteinte avec une préfissuration à l'air. Cette partie est importante pour éviter l'effet d'une entaille usinée et pour assurer qu'il n'y a aucun effet du changement de la forme du front de fissure sur les données des vitesses de fissuration.

En ce qui concerne le matériau d'étude et la géométrie de l'éprouvette choisie, on a préfissuré toutes les éprouvettes jusqu'à une longueur d'environ 1 mm, afin d'avoir un rapport  $a/W$  initial d'environ 0.3. En considérant les spécifications de la norme, nous pouvons utiliser les résultats de fissuration dans l'intervalle  $0.3 \leq a/W \leq 0.7$ .

Le rapport de charge  $R$  (rapport entre la charge minimale et la charge maximale du cycle,  $P_{min}/P_{max}$ ) et le niveau de  $\Delta K$  de préfissuration dépendent des conditions initiales de l'essai qu'on veut réaliser ( $\Delta K_{ini}$  et  $R$ ). En particulier la valeur de  $K_{max}$  atteinte pendant la préfissuration ne doit pas dépasser le  $K_{max}$  de début de l'essai.

### 3.1.2 Présentation du banc d'essai Hycomat

Afin d'investiguer le rôle de l'hydrogène gazeux dans le phénomène de la fragilisation par hydrogène, et en particulier sur les cinétiques de propagation de défauts de type fissure et sur les mécanismes de rupture, nous avons la nécessité de réaliser des essais de fissuration sous haute pression d'hydrogène gazeux. Pour ce faire, un banc d'essai de fatigue a été développé à l'Institut Pprime à Poitiers, sur le site du CEAT (Centre d'Etudes Aérodynamiques et Thermiques).

Le banc d'essai Hycomat ([69,127]) est un dispositif expérimental dédié à l'étude des effets d'environnement (en particulier de gaz sous haute pression) sur le comportement mécanique des matériaux. Il est constitué d'une machine de traction hydraulique INSTRON 8802 munie d'une chambre qui peut être pressurisée (Figure 3 - 3a). L'intérieur de l'enceinte est cylindrique, de diamètre 150 mm et de profondeur 100 mm pour un volume utile de 1.77 litres. Ce volume permet le montage d'éprouvettes de fissuration de type CT ainsi que des éprouvettes cylindriques. La Figure 3 - 3b montre l'intérieur de l'enceinte, avec les mors dédiés au chargement cyclique et une éprouvette CT installée. La course maximale du vérin est limitée à 20 mm, ce qui restreint les dimensions des éprouvettes. Un schéma de l'enceinte couplée à la ligne de charge est montré dans la Figure 3 - 3c. On peut distinguer les deux cellules de charge, interne et externe. A noter que la cellule interne est compensée par rapport à la pression à l'intérieur de l'enceinte, afin d'éviter de mesurer une erreur sur la charge lue, dû à la pression de l'enceinte sur le vérin.

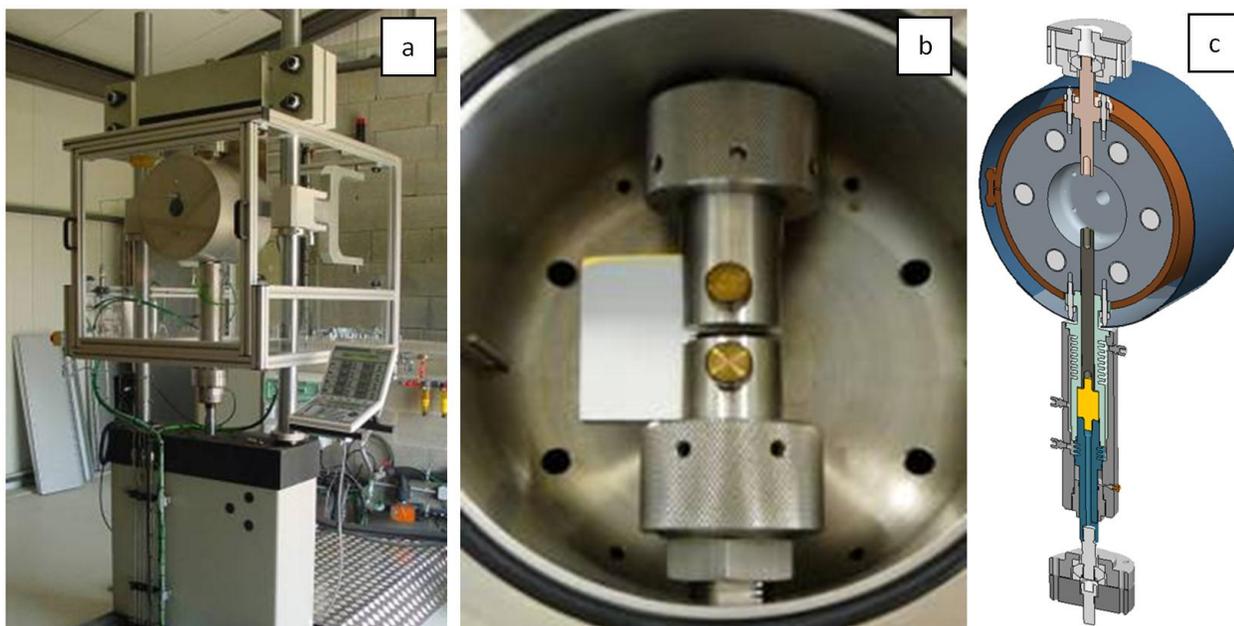


Figure 3 - 3 : Banc d'essai Hycomat : machine de traction hydraulique INSTRON 8802 munie d'une chambre qui peut être pressurisée (a), intérieur de l'enceinte, avec les mors dédiés au chargement cyclique (b) et schéma de l'enceinte couplée à la ligne de charge (c)

La capacité maximale de la machine est de 25 kN en traction. Par contre, la machine ne peut pas travailler en compression, en raison du système d'alignement de la rotule en haut et en bas de l'enceinte. La fréquence de sollicitation cyclique est limitée à un maximum de 40 Hz.

Dans cette configuration, la machine permet la réalisation d'essais mécaniques conventionnels de traction uniaxiale, de fluage et de fatigue (à rapport de charge positif).

En termes d'atmosphère gazeuse, en plus des essais sous air, il est possible d'effectuer des essais sous azote ( $N_2$ ), dioxyde de carbone ( $CO_2$ ), ou hydrogène gazeux ( $H_2$ ) jusqu'à une pression de gaz de 40 MPa. L'enceinte est régulée thermiquement par l'intermédiaire d'un collier chauffant permettant de réaliser des essais en contrôle de température, jusqu'à 150 °C.

La machine est dotée de deux portes différentes. Une porte peut être utilisée jusqu'à une pression de 4 MPa. Elle dispose d'une fenêtre de 40 mm de diamètre centrée sur la ligne de charge. Une seconde porte permet de réaliser les essais jusqu'à une pression de 40 MPa. Cette porte dispose d'une fenêtre plus petite, 26mm de diamètre, décentrée par rapport à l'axe de chargement suivant la direction de propagation de la fissure d'une éprouvette CT installée à l'intérieur. Des images de l'évolution de la fissure peuvent être acquises au moyen d'un microscope longue distance de type Questar. La Figure 3 - 4a montre ce type de microscope placé en face de la machine. La Figure 3 - 4b montre une image de la pointe de la fissure obtenue avec Questar.

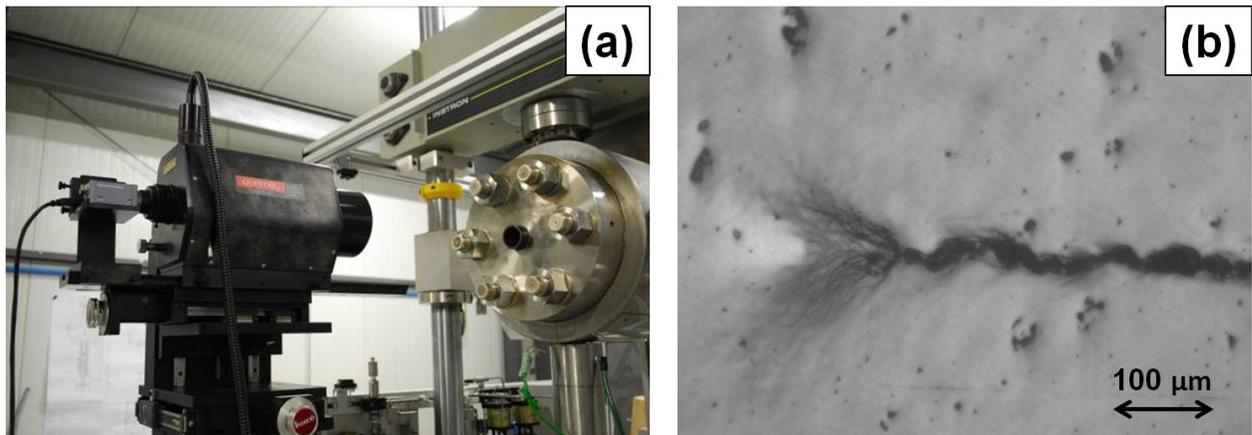


Figure 3 - 4 : Microscope longue distance de type Questar installé en face de la fenêtre sur la porte de la machine (a) et suivi optique de la longueur de la fissure (b)

D'un point de vue métrologique, il existe un branchement pour une jauge de déformation pour la mesure de fermeture, et un branchement des câbles pour la mesure de la longueur de fissure par la méthode de différence de potentiel (Figure 3 - 5). Un thermocouple mesure par ailleurs la température du gaz à l'intérieur de l'enceinte. L'utilisation d'un extensomètre sous haute pression d'hydrogène est en cours de développement.



Figure 3 - 5 : Branchement pour une jauge de déformation sur la gauche, et branchement des câbles pour la mesure de la longueur de fissure par la méthode de différence de potentiel sur la droite

Un spectromètre de masse a récemment été installé pour la mesure des quantités d'oxygène et vapeur d'eau présentes dans l'enceinte pendant les essais. Le Tableau 3 - 1 présente les taux d'impuretés mesurés pour l'hydrogène et l'azote utilisés lors de cette étude. La mesure a été faite à pression atmosphérique, mais a priori la proportion reste la même pour n'importe quelle pression. En conséquence, aux pressions plus élevées, on aura une quantité d'oxygène et de vapeur d'eau plus élevée dans l'absolu.

	<b>H<sub>2</sub>O [ppm]</b>	<b>O<sub>2</sub> [ppm]</b>
<b>Azote</b>	25	15
<b>Hydrogène</b>	18	10

Tableau 3 - 1 : Taux d'impuretés dans l'hydrogène et dans l'azote, mesurés au moyen d'un spectromètre de masse

Plusieurs dispositifs de sécurité sont mis en place autour de l'installation. Le système de contrôle pour la mise en pression de l'enceinte et pour le démarrage et l'arrêt de l'essai est notamment placé à distance de la machine d'essai, dans une pièce séparée. Des détecteurs d'H<sub>2</sub> et de CO<sub>2</sub> sont installés, avec un extracteur d'air toujours en marche pendant l'essai. Un système de circulation d'eau permet le refroidissement de la machine, et un thermocouple permet de connaître la température à l'intérieur de l'enceinte.

Les essais de propagation de fissure en fatigue sous hydrogène présentés ici sont réalisés à température ambiante. Pour réaliser un essai de fissuration, l'éprouvette CT est fixée aux mors de la machine de traction dans l'enceinte. La porte est ensuite fermée et, après trois purges sous azote, l'enceinte est mise en pression d'hydrogène. Le système informatique mis en place permet de piloter l'essai et d'acquérir les données de manière automatisée avec les logiciels WaveMatrix® ou ACG® (Advanced Crack Growth) de Instron.

### 3.1.3 Techniques de suivi de fissure

Les techniques de suivi de fissure utilisées sont :

- La méthode optique, qui consiste à observer la fissure avec un microscope longue distance placé en face de l'éprouvette. Le microscope est monté sur un guide qui permet de mesurer le déplacement dans la direction de la fissure (Figure 3 - 4).
- La méthode de la chute de potentiel (Figure 3 - 5), qui consiste à faire passer un courant électrique dans l'éprouvette et mesurer la variation de différence de potentiel avec l'avancée de la fissure. Les prises de potentiel sont fixées en face avant, de part et d'autre de la fissure.

La méthode optique est utilisée dans la phase de préfissuration à l'air des éprouvettes, et pour l'essai de propagation de fissure à l'air.

La méthode de la chute de potentiel a davantage été utilisée, surtout dans le cas où la mesure optique est difficile ou qu'elle est impossible sur le côté opposé (par exemple lorsque l'éprouvette est enfermée dans l'enceinte).

Pippan *et al.* [128] ont comparé la technique de la chute de potentiel et la méthode de la complaisance, basée sur la mesure de déformation en pointe de fissure, dans le but d'étudier la propagation d'une fissure de fatigue et l'effet de la fermeture dans le fer ARMCO. Ils montrent que la technique de la chute de potentiel est plus précise pour la mesure de la longueur de fissure à l'air, tandis que la technique de la complaisance convient pour la mesure de la longueur de fissure et la mesure de fermeture dans l'essai sous vide, à cause de la faible résistance de contact entre les surfaces de rupture. Nous allons utiliser davantage la technique de la chute de potentiel. La méthode optique sera utilisée pour les préfissurations et l'essai à l'air, et pour la détermination du polynôme pour le suivi de potentiel.

L'utilisation de la technique de suivi de fissure par différence de potentiel nécessite la détermination de la relation entre la longueur de fissure  $a/W$  et la variation relative de différence de potentiel  $V/V_0$ . L'identification du polynôme qui exprime cette relation est réalisée expérimentalement sur un essai à l'air. A partir du potentiel initial à la fin de la préfissuration  $V_0$ , on impose quelques cycles pour avoir une petite avancée de la fissure. On acquiert alors la valeur du potentiel  $V$  pour chaque avancée de la fissure, qui est mesurée optiquement sur les deux côtés de l'éprouvette. Les mesures sont prises dans l'intervalle  $0.28 < a/W < 0.72$ . L'ensemble des données obtenues est ajusté par une courbe d'interpolation polynomiale (Figure 3 - 6).

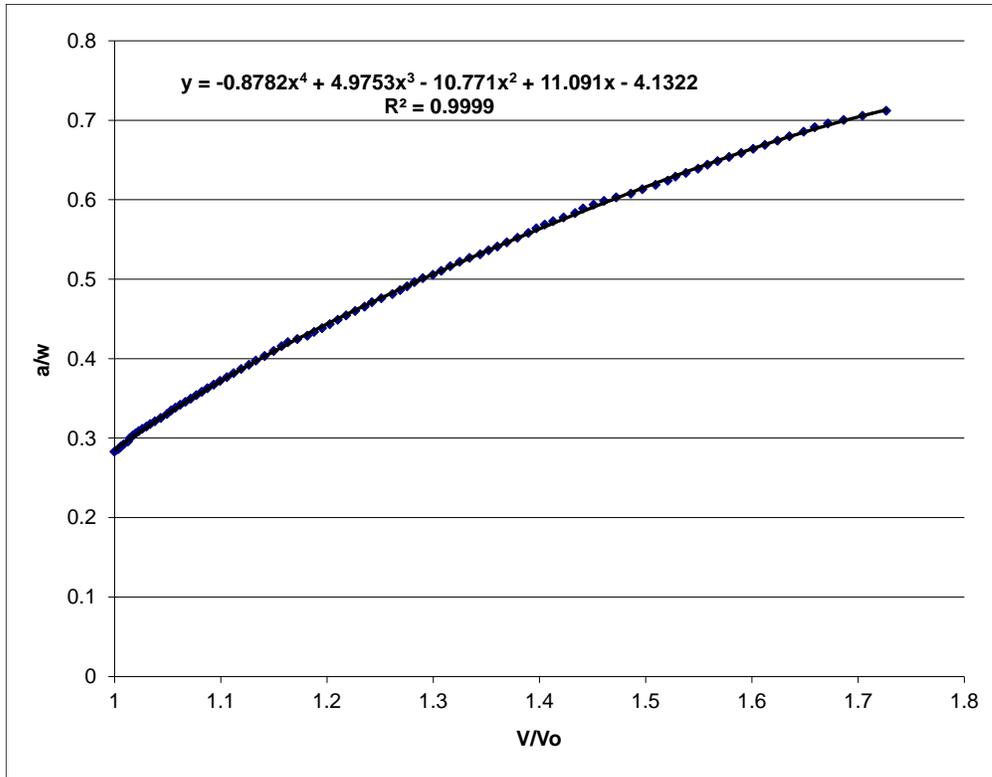


Figure 3 - 6 : Détermination du polynôme qui exprime la relation entre la longueur de fissure  $a/W$  et la variation relative de différence de potentiel  $V/V_0$

Le polynôme d'ordre quatre interpole les mesures avec un niveau de précision très élevé (coefficient de détermination  $R^2 = 0.9999$ ) :

$$\frac{a}{W} = -0.8782 \left(\frac{V}{V_0}\right)^4 + 4.9753 \left(\frac{V}{V_0}\right)^3 - 10.771 \left(\frac{V}{V_0}\right)^2 + 11.091 \left(\frac{V}{V_0}\right) - 4.1322 \quad (3.3)$$

Ce polynôme sera donc utilisé pour la détermination de la longueur de la fissure à partir des acquisitions numériques (et donc après l'essai), ou bien utilisé directement dans le logiciel pour la détermination des charges à imposer avec l'évolution de la longueur de la fissure (par exemple le logiciel ACG de Instron utilise cette mesure pour réaliser des essais à  $\Delta K$  constant ou décroissant).

La plupart des essais ont été réalisés à un rapport de charge  $R = 0.1$ . Du fait de la fermeture de la fissure, un contact électrique s'établit entre les surfaces de rupture, ce qui induit une forte variation du signal de potentiel pendant un cycle de sollicitation. La synchronisation de l'acquisition du signal avec la fréquence de chargement est nécessaire pour effectuer l'acquisition du potentiel à l'instant où la charge maximale est atteinte, afin d'obtenir des mesures propres. La mesure des effets de fermeture sera présentée dans le prochain paragraphe.

## 3.2 Propagation de fissures de fatigue dans le fer pur : courbes de référence

Un essai de propagation de fissure à l'air a tout d'abord été réalisé. Dans le même temps, des mesures de fermeture de la fissure ont été réalisés.

Ensuite, un essai de propagation sous vide a été réalisé. Le but est d'avoir des données de référence sur le comportement en fissuration, en l'absence d'effet d'environnement, tant en termes de cinétiques de propagation que de modes de rupture.

Enfin, un essai sous azote a été réalisé, afin de montrer l'influence d'une quantité limitée d'oxygène et de vapeur d'eau sur la propagation de fissures de fatigue.

Les essais de fissuration sous vide et sous air ambiant sont réalisés sur une machine hydraulique Instron 8800 (pression  $5 \times 10^{-6}$  mbar). L'essai sous azote a été réalisé sur Hycomat.

### 3.2.1 Propagation de fissures de fatigue sous air ; effets de fermeture

Les essais de fatigue ont été réalisés en général avec une forme de signal sinusoïdale à un rapport de charge  $R = 0.1$  ou  $R = 0.7$ . Si, par exemple, nous examinons le cas d'un chargement cyclique imposé à  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$  et les rapports de charge  $R = 0.1$  et  $0.7$ , on remarque que la charge maximale imposée est très différente. Un rapport de charge élevé, dans ce cas  $0.7$ , nous permet de limiter le phénomène de la fermeture de la fissure [129]. Par contre, la valeur de  $K_{max}$  est trois fois plus élevée.

Le fer Armco est un matériau très ductile, avec une limite d'élasticité relativement basse. En conséquence, la déformation plastique générée en pointe de fissure est élevée. Un rapport de charge faible est à privilégier pour éviter un excès de déformation plastique monotone atteinte au maximum de charge ( $K_{max}$ ) sur le ligament non fissuré. Hélas, un rapport de charge faible peut causer le phénomène de la fermeture de la fissure.

La fermeture est la mise en contact des deux surfaces de rupture autour de la charge minimale du cycle. Elber [130] a mis en évidence ce phénomène et a proposé l'hypothèse que le chargement appliqué ne serait efficace pour la propagation qu'à partir du moment où la fissure est ouverte sur toute sa longueur physique. On définit en conséquence un  $\Delta K$  « effectif » inférieur au  $\Delta K$  appliqué. Le  $\Delta K$  effectif ( $\Delta K_{eff}$ ) sera calculé comme la différence entre la valeur maximale de  $K$  et la valeur qui donne l'ouverture de la fissure :  $\Delta K_{eff} = K_{max} - K_{ouv}$ . Elber a montré que cette définition permet de supprimer l'influence du rapport de charge sur les lois de fissuration.

Des essais de mesure de la fermeture sont de ce fait nécessaires pour quantifier ce phénomène. Au final, la démarche que nous avons décidé de suivre est la suivante :

- Effectuer les mesures de fermeture pour différentes valeurs de  $\Delta K$  à  $R = 0.1$  ;
- Corriger la courbe de fissuration des effets de fermeture ;
- Valider les résultats en comparant les données obtenues à  $R=0.1$  et corrigée des effets de fermeture avec la courbe de fissuration pour un essai à  $R=0.7$ .

Pippan *et al.* [128,129] ont étudié la propagation de fissures de fatigue à proximité du seuil dans le fer Armco sous différents atmosphères. Ils ont analysé aussi l'évolution de la fermeture, en particulier sous vide poussé. Ils montrent qu'il n'y a pas de fermeture pour un rapport de charge  $R=0.7$ . Par ailleurs les effets de fermeture mesurés à  $R=0.1$  sont différents entre l'essai sous air et l'essai sous vide poussé à proximité du seuil de  $\Delta K$ . Par contre, pour des valeurs de  $\Delta K$  plus élevées, l'effet de fermeture est approximativement le même sous vide et sous air. Dans ce cas, la différence entre les valeurs des vitesses de propagation ne change pas si on considère les valeurs nominales  $\Delta K$  ou les valeurs effectives  $\Delta K_{\text{eff}}$ .

Notre objectif étant d'étudier le comportement en fissuration dans le domaine des valeurs de  $\Delta K$  moyennes et élevées, nous avons alors examiné le phénomène de fermeture à l'air, et ensuite nous avons utilisé ces valeurs pour corriger les  $\Delta K$  des essais sous n'importe quelle atmosphère.

Afin de mesurer la fermeture de la fissure, une jauge pour la mesure de la déformation est collée sur la face arrière de l'éprouvette CT utilisée. La mesure de fermeture consiste en un enregistrement numérique du signal de déformation délivré par la jauge en fonction de la charge pendant quelques cycles réalisés à 0.2 Hz pour une certaine valeur de  $\Delta K$ . Ces valeurs seront traitées avec différents outils disponibles (Matlab, Excel, Python) pour en extraire l'information souhaitée. Ensuite on impose une valeur de  $\Delta K$  légèrement plus élevée, on fait propager la fissure de quelque centaine de micromètres, et on mesure la longueur de fissure finale optiquement. On peut donc effectuer une nouvelle mesure de fermeture pour le nouveau  $\Delta K$  et continuer l'essai.

Nous avons utilisé en particulier un script Python utilisé pour le calcul de la valeur de la charge à l'ouverture  $P_{\text{ouv}}$ . Le signal de la jauge est transformé pour avoir la relation entre  $P$  (charge) et  $\delta$  (écartement). Lorsque le phénomène de fermeture de fissure se produit, à cause de la rigidité différente de l'éprouvette, la courbe charge-écartement montre un changement de pente. Pour le calcul de  $P_{\text{ouv}}$ , nous avons utilisé la technique différentielle, qui consiste à mesurer l'écartement  $\delta'$ , calculé à partir de celui de  $\delta$  en enlevant la partie proportionnelle ( $\delta' = \delta - CP$ , où  $C$  est la complaisance). En l'absence de fermeture, cette courbe est verticale. La valeur de  $P_{\text{ouv}}$  est prise sur le graphe  $P - \delta'$  là où on observe une variation sur la mesure de  $\delta'$  du 2% (valeur choisie à discrétion de l'opérateur).

Compte tenu de la dispersion de mesure, le calcul est répété sur plusieurs cycles, environ 20 en moyenne, en fonction de la dispersion sur la mesure (souvent élevée). La valeur de  $P_{\text{ouv}}$  est donc calculée pour chaque valeur de  $\Delta K$  considérée, ce qui représente environ une dizaine de mesures dans l'intervalle :  $6.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2} < \Delta K < 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .

Les résultats de vitesses de propagation de fissures sous air sont montrés dans la Figure 3 - 7, en fonction de  $\Delta K$  et  $\Delta K_{\text{eff}}$ .

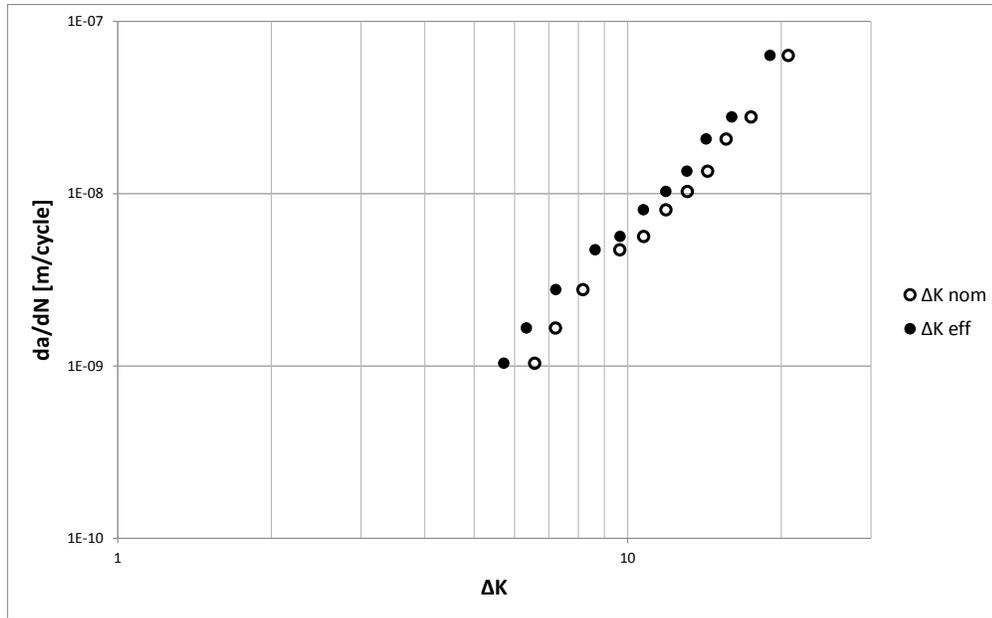


Figure 3 - 7 : Vitesses de propagation de fissures sous air. Mesures réalisées à différentes valeurs de  $\Delta K$  et corrigées par rapport à la fermeture ( $\Delta K_{eff}$ )

Un essai à rapport de charge  $R = 0.7$  est réalisé pour confirmer les valeurs des vitesses de propagation mesurées expérimentalement en fonction de  $\Delta K_{eff}$ . Dans ce cas aussi la longueur de la fissure a été mesurée optiquement. La Figure 3 - 8 montre les deux courbes. Les valeurs de vitesse de propagation à  $R = 0.7$  sont très proches des valeurs obtenues pour  $R = 0.1$  et corrigées à partir de la valeur mesurée de  $K_{ouv}$ . Cela permet donc de valider la procédure de mesure de fermeture utilisée.

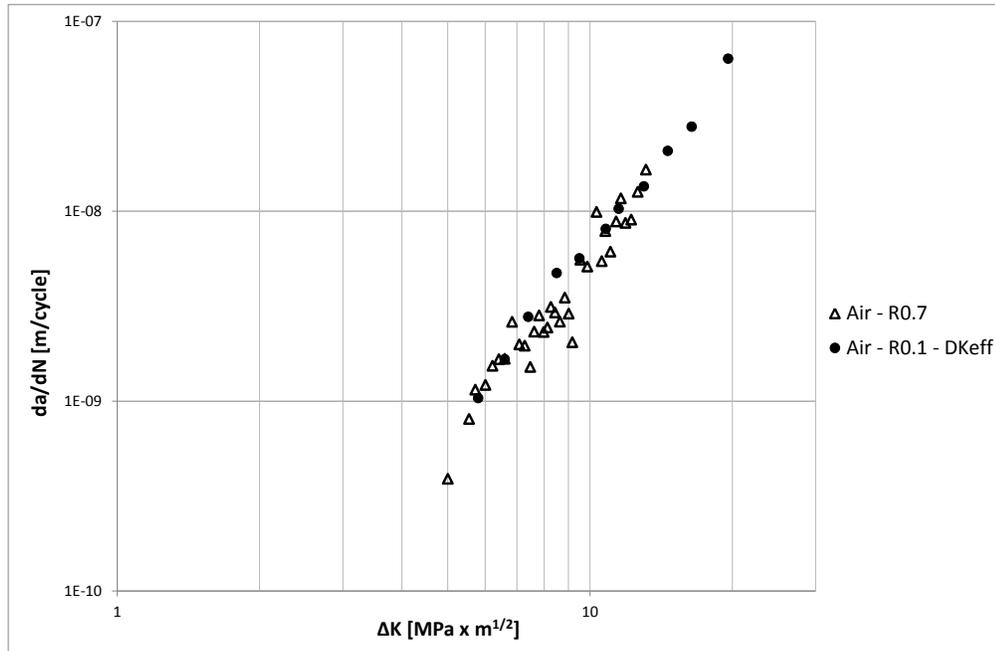


Figure 3 - 8 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures sous air à différents rapports de charge. Les vitesses de propagation se superposent, ce qui nous permet de valider les résultats de fermeture

### 3.2.2 Propagation de fissures de fatigue sous vide

La Figure 3 - 9a montre la courbe de propagation de fissures  $da/dN - \Delta K$  obtenue sous vide (pression  $5 \times 10^{-6}$  mbar) et comparée à celle obtenue sous air ambiant. On observe une augmentation des vitesses de propagation sous air d'un facteur 5 environ par rapport à l'essai sous vide. Les pentes des courbes de fissuration sont du même ordre, ce qui amène à supposer que l'action d'oxygène et de vapeur d'eau ne change pas fondamentalement les mécanismes de fissuration. Plusieurs études montrent des vitesses de propagation beaucoup plus élevées sous air par rapport aux essais sous vide, et une valeur de  $\Delta K_{th}$  (seuil de propagation) plus bas [129,131,132]. Pippan [7] a ainsi mis en évidence une différence des vitesses de propagation dans le fer Armco proche d'un ordre de grandeur entre air et vide (Figure 3 - 9b). On constate qu'à  $\Delta K = 7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  les vitesses de propagation sont très proches de nos résultats. Par contre il montre une influence limitée de la pression sur la valeur du seuil de propagation  $\Delta K_{th}$ , qui devient plus importante seulement sous un vide particulièrement poussé (pression de  $1.3 \times 10^{-6}$  Pa en Figure 3 - 9b) :  $\Delta K_{th} = 3 - 3.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sous vide contre  $2 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sous air.

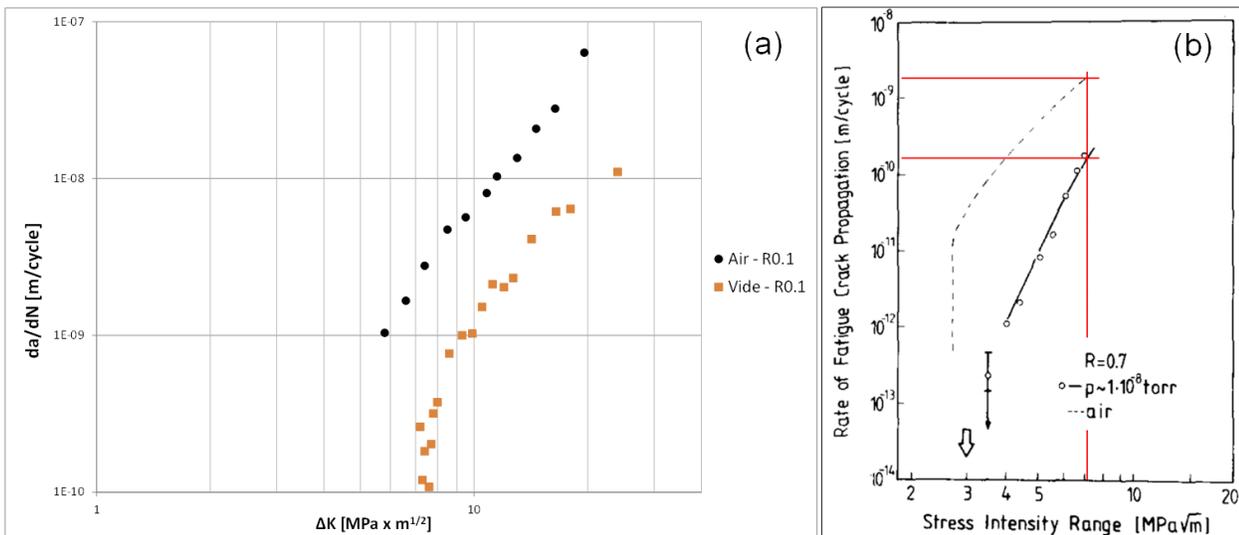


Figure 3 - 9 : Comparaison des vitesses de propagation de fissure mesurées sous air et sous vide (a) et résultats obtenus par Pippan [129]. On remarque qu'à  $\Delta K = 7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  les résultats sont proches

Dans notre essai sous vide, nous ne nous sommes pas intéressés au seuil, et avons commencé le chargement à une valeur initiale  $\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Les vitesses de propagation à cette valeur de  $\Delta K$  montrent une différence beaucoup plus importante par rapport à l'air, comme si sous vide la valeur du seuil  $\Delta K_{th}$  est plus élevée que sous air, et proche de cette valeur initiale. Cette différence des vitesses de propagation à faible  $\Delta K$  peut être expliquée avec la perte de résistance à la fissuration causée par la présence de la vapeur d'eau dans l'air ambiant, qui modifie le seuil de fissuration.

La Figure 3 - 10 montre la surface de rupture au moment de la transition de la préfissuration sous air à la fissuration sous vide (réalisée au microscope électronique à balayage (MEB)). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite (cette convention sera conservée pour toutes les fractographies dans ce manuscrit). A ce grossissement, on remarque surtout le changement de couleur de la surface, dû au changement des vitesses de propagation, et probablement, à l'oxydation de la surface dans la propagation sous air.

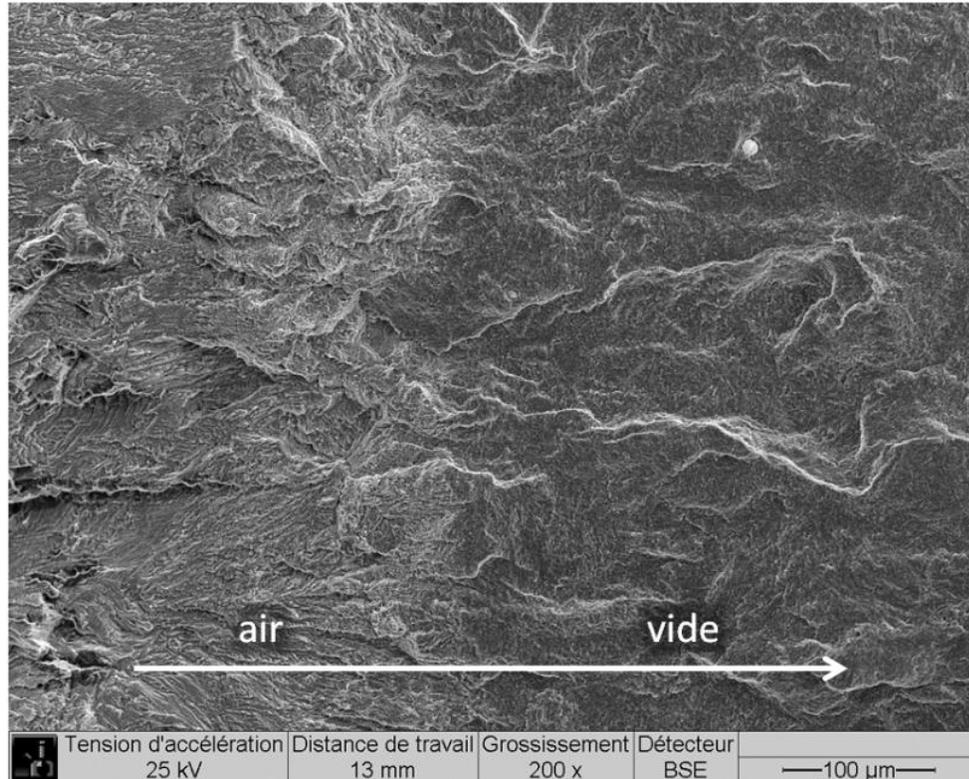


Figure 3 - 10 : Observation au MEB de la surface de rupture au moment de la transition de la préfissuration sous air à la fissuration sous vide. La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

La Figure 3 - 11 montre la comparaison des surfaces de rupture à  $\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . La rupture se fait principalement par quasi-clivage. La morphologie est légèrement différente suivant l'environnement. Dans les deux cas la propagation est complètement transgranulaire. Cependant, dans le cas de propagation sous air (Figure 3 - 11c et d) la surface de fracture est constituée d'un motif « river-like » dans la direction de la propagation de la fissure (toujours de la gauche vers la droite). Les surfaces de propagation sous vide (Figure 3 - 11a et b) ne montrent pas cette direction préférentielle de la fissuration. A un grossissement plus élevé on peut mieux observer ce phénomène (Figure 3 - 11b et d). On constate la différence entre les deux surfaces de rupture (plus orientée dans la direction de propagation dans l'essai sous air), mais le mécanisme de rupture reste transgranulaire. Cette différence peut être due principalement à la différence des vitesses de propagation, qui sont encore très basses à cette valeur de  $\Delta K$  pour l'essai sous vide.

Pippan [129] a observé dans la zone près du seuil que la rugosité de la surface de rupture est plus élevée sous air que sous vide. Il suppose que cela explique la différence dans la mesure de fermeture dans les deux environnements.

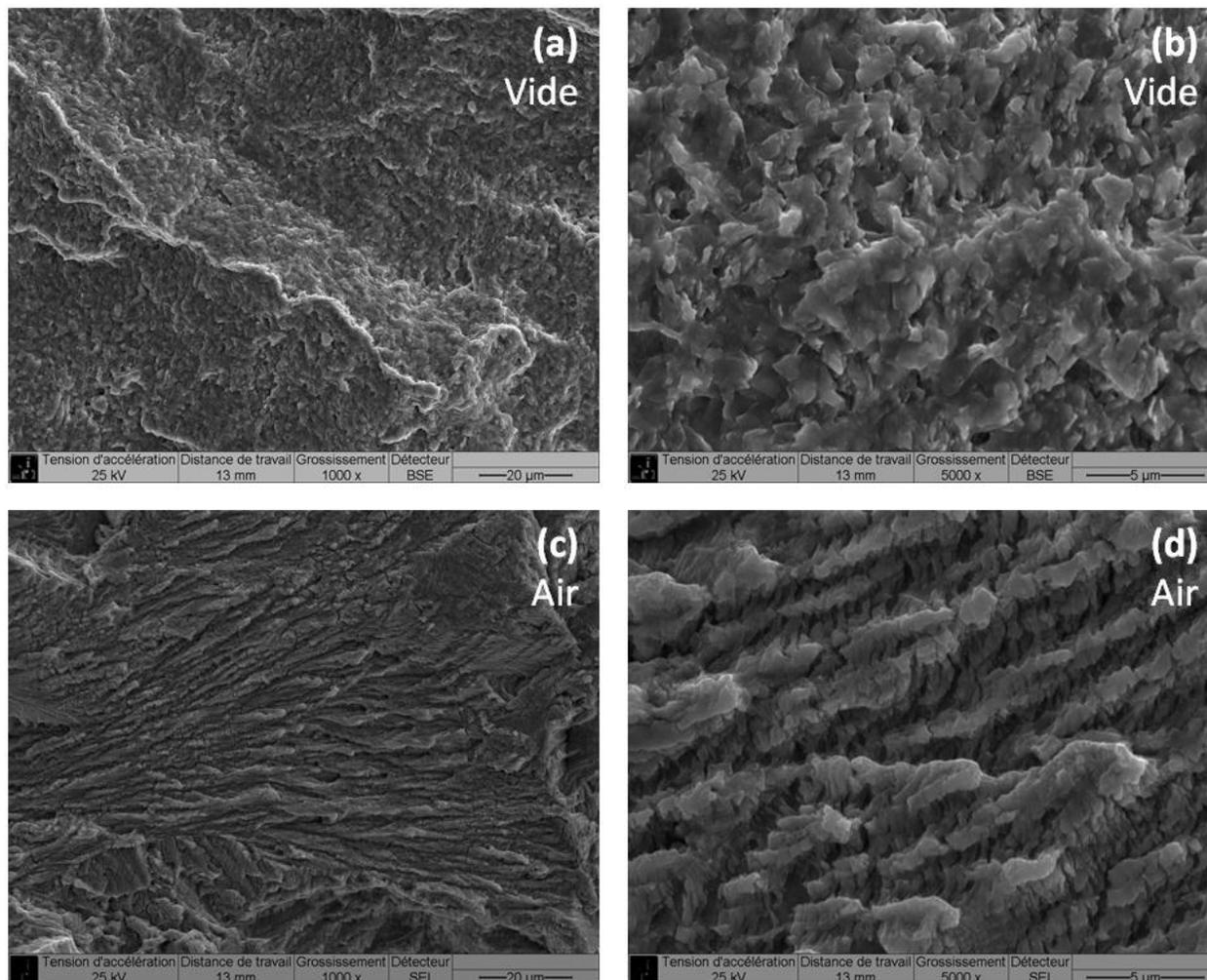


Figure 3 - 11 : Comparaison des surfaces de rupture à  $\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Fractographies sous vide réalisées à un grossissement  $\times 1000$  (a) et  $\times 5000$  (b) et fractographies sous air réalisés à  $\times 1000$  (c) et  $\times 5000$  (d). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

Aux valeurs de  $\Delta K$  plus élevées, les surfaces de rupture sont beaucoup plus similaires. La Figure 3 - 12 montre les fractographies sous vide et sous air pour  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Il est clair que, dans ces conditions de propagation stable, loin du seuil de propagation, les modes de rupture dans les deux cas sont quasiment identiques, avec un motif orienté dans la direction de propagation de la fissure et des marquages en direction transversale. La rupture se fait principalement par quasi-clivage, avec des fissures secondaires qui apparaissent. On note cependant que les fissures secondaires sont beaucoup plus ouvertes à l'air. Pippan montre aussi des fractographies obtenues pour une valeur de  $\Delta K$  bien supérieure à la valeur seuil. Il conclut que les profils sont similaires entre air et vide. Par conséquent, dans ce cas, les effets de la fermeture dans l'air et sous vide sont approximativement les mêmes.

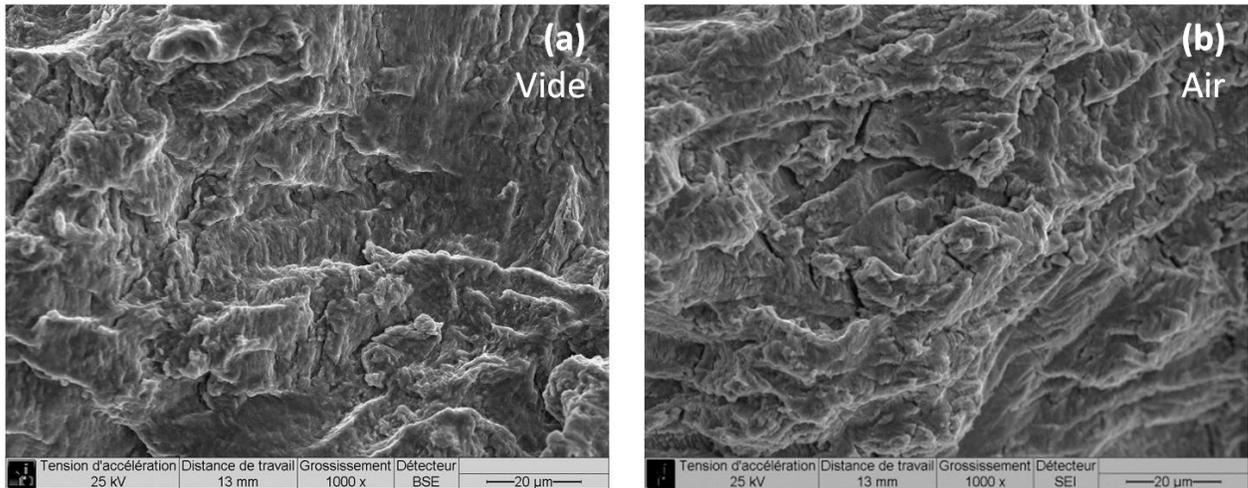


Figure 3 - 12 : Fractographies sous vide (a) et sous air (b) réalisées à  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

### 3.2.3 Essai sous azote

Nous avons réalisé un essai de propagation de fissure de fatigue sous 3.5 MPa de pression d'azote à 20 Hz. Le but était de vérifier si la présence d'une quantité limitée d'oxygène et de vapeur d'eau (Tableau 3 - 1) pouvait provoquer l'augmentation des vitesses de propagation d'un facteur 5 que nous avons observé à l'air ambiant par rapport à l'essai sous vide.

La Figure 3 - 13 montre la courbe de propagation sous azote comparée aux courbes sous air et sous vide.

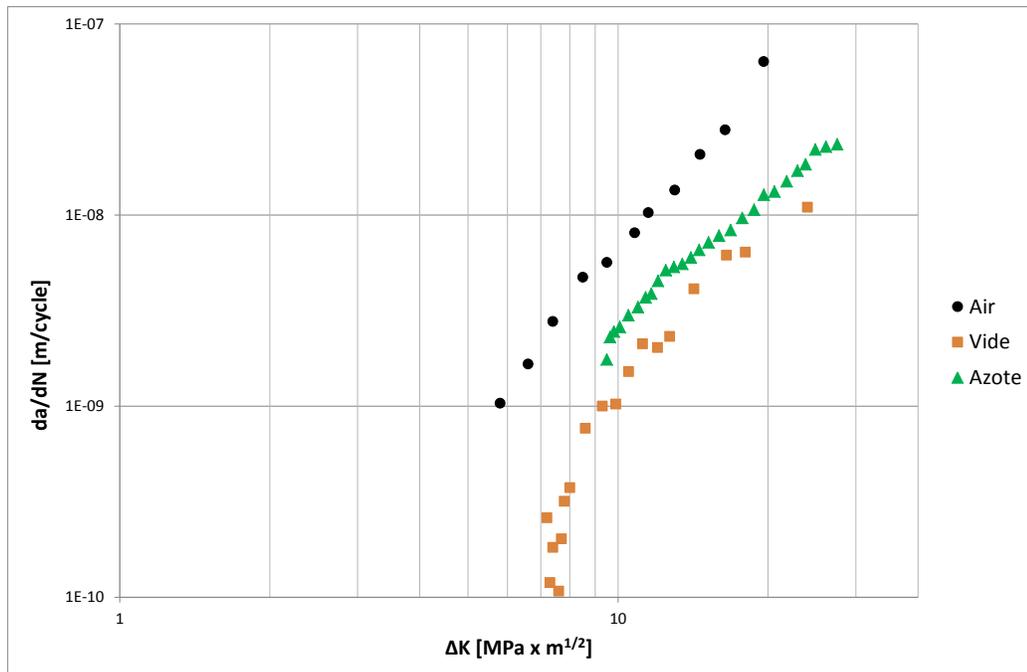


Figure 3 - 13 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures sous azote avec les vitesses sous air et sous vide

Sous azote nous observons des vitesses de propagation légèrement plus élevées que sous vide (d'un facteur deux en moyenne). Ceci est probablement dû à la présence de la vapeur d'eau dans l'azote (environ 25 ppm). En plus, la pente des courbes est légèrement différente en fonction de l'environnement. Cet effet devient plus important dans le domaine des vitesses lentes, probablement en raison de l'approche au seuil de propagation. Petit *et al.* [133] ont montré l'influence de l'environnement près du seuil de propagation sur un acier de type E460. Ils ont réalisé des essais sous vide, sous azote et sous air, et ils ont observé des vitesses de propagation plus élevées sous air et sous azote, avec une différence qui devient plus importante à faible  $\Delta K$ , et un seuil de propagation beaucoup plus bas sous azote et sous air.

La Figure 3 - 14 montre les surfaces de rupture de l'essai sous azote, observés à  $\Delta K = 10$  et  $20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .

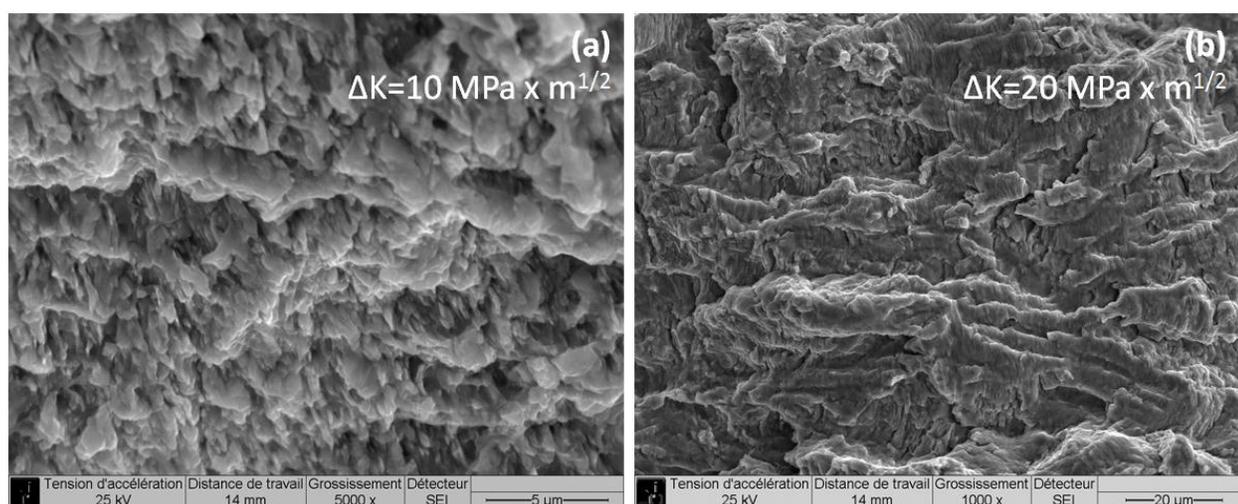


Figure 3 - 14 : Observations des surfaces de rupture de l'essai sous azote à  $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (a) et  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

Les surfaces de rupture révèlent un mode de rupture transgranulaire très ductile, semblable à celui observé sous vide. Pour des faibles valeurs de  $\Delta K$  (en particulier  $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  en Figure 3 - 14a), la morphologie est similaire à celle de l'essai sous vide (Figure 3 - 11b), avec des facettes de quasi-clivage, mais sans présenter l'aspect directionnel que nous avons observé sous air (Figure 3 - 11d). Ceci peut être dû à la quantité limitée de vapeur d'eau en pointe de fissure, qui fait augmenter légèrement les vitesses de propagation, qui restent pourtant plus proches de l'essai sous vide que sous air. A  $\Delta K$  plus élevé ( $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  en Figure 3 - 14b), l'aspect de la surface de rupture est très proche des essais sous air et sous vide (Figure 3 - 12), avec des facettes de quasi-clivage et quelques fissures secondaires.

Au final, ces observations permettent de conclure que la propagation sous environnement inerte (vide) ou modérément agressif (azote ou air), se fait essentiellement par quasi-clivage, avec quelques fissures secondaires aux valeurs de  $\Delta K$  plus élevées. L'influence de la vapeur d'eau est évidente sur les vitesses de propagation de fissures, mais les mécanismes de rupture sont peu affectés.

### 3.3 Propagation de fissure sous haute pression d'hydrogène gazeux

Afin d'étudier la sensibilité du fer Armco à la FPH, nous avons réalisé des essais de propagation de fissures de fatigue sous haute pression d'hydrogène. Les éprouvettes sont les mêmes (Compact Tension) que celles utilisées pour les essais sous vide et sous air, présentées dans le paragraphe 3.1. La machine de fatigue qui permet de réaliser ce type d'essais est présentée dans le paragraphe 3.2.

#### 3.3.1 Effet de l'hydrogène sur la propagation d'une fissure de fatigue

Un premier essai a été réalisé sous 9 MPa d'hydrogène à  $R=0.7$  et 20 Hz à température ambiante. Le but est d'établir l'influence de l'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissure et observer le changement des modes de rupture.

Les conditions de départ sont similaires à celles utilisées lors des essais précédemment réalisés sur la même machine sur un acier martensitique [69], qui montrent une augmentation importante des vitesses de propagation et un changement des modes de rupture. Le rapport de charge de ce premier essai est élevé pour s'affranchir des effets de la fermeture sur les vitesses de propagation, et donc pour isoler l'effet de l'environnement sur l'endommagement en pointe de fissure. Une raison secondaire est d'éviter que les effets de fermeture puissent altérer les surfaces de rupture. De plus, pour ce matériau très ductile, cet essai est réalisé à partir d'une valeur  $\Delta K$  très faible pour garantir un domaine de propagation substantiel, à cause de la valeur très élevée de  $K_{max}$  pour ce rapport de charge.

La Figure 3 - 15 montre que les vitesses de propagation de fissures de fatigue sont superposables à celles obtenues sous air.

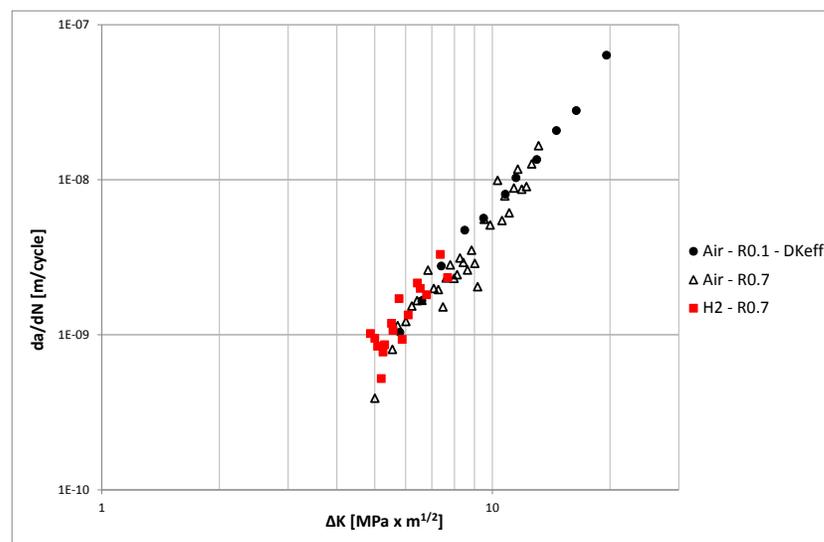


Figure 3 - 15 : Vitesses de propagation de fissures de fatigue sous 9 MPa d'hydrogène gazeux à  $R=0.7$  et  $f=20\text{Hz}$  comparées à celles observées sous air

Une pression de 9 MPa d'hydrogène n'entraîne donc pas d'augmentation des vitesses de propagation, ni de modification de la pente de la courbe  $da/dN-\Delta K$  à faible valeur de  $\Delta K$  et à température ambiante. Cette observation suggère que la présence d'hydrogène gazeux, à cette pression, ne change pas fondamentalement les modes de rupture pendant la propagation.

Les fractographies présentées en Figure 3 - 16 montrent toutefois une situation différente de ce qui pourrait être attendu compte tenu des remarques précédentes. En effet, à faible valeur de  $\Delta K$ , nous observons une propagation principalement intergranulaire (Figure 3 - 16a et b), avec de multiples facettes plates qui suivent la forme des grains, en alternance avec des ruptures transgranulaires irrégulières. A partir de  $\Delta K \approx 7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  la propagation redevient complètement transgranulaire, comme le montrent les Figure 3 - 16c et d.

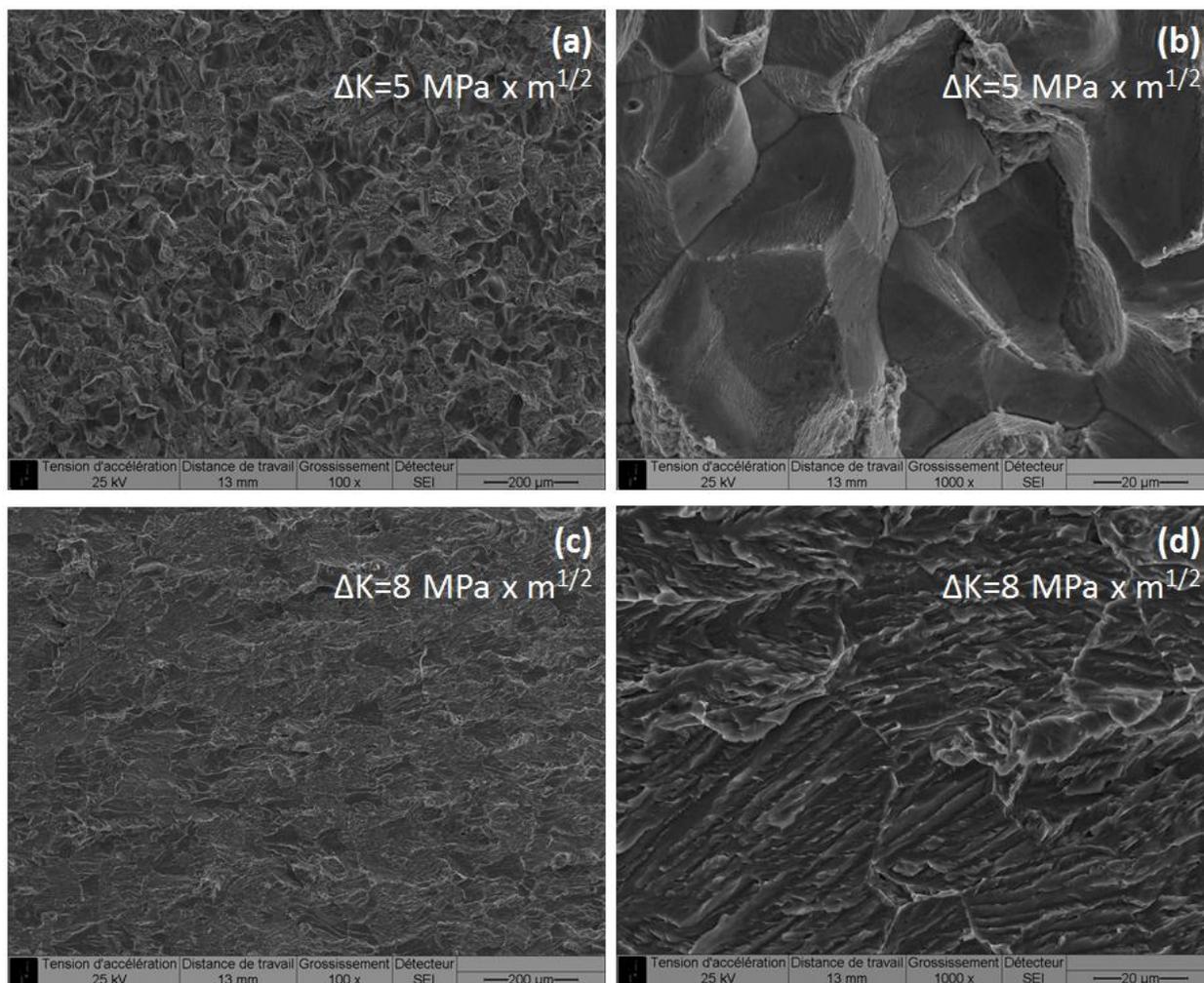


Figure 3 - 16 : Fractographies de l'essai sous 9 MPa d'hydrogène réalisées à  $\Delta K=5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  à  $\times 100$  (a) et  $\times 1000$  (b), et  $\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  à  $\times 100$  (c) et  $\times 1000$  (d). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

Les facettes intergranulaires présentent en outre des marquages importants, comme montré en Figure 3 - 17. La distance inter-marquage est de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à l'avancement de la fissure de 100 à 1000 cycles. On peut affirmer que l'hydrogène, pour cette pression et dans cet intervalle de valeurs de  $\Delta K$ , modifie le chemin de la fissure, en passant d'une propagation transgranulaire avec des surfaces de quasi-clivage en environnement inerte (ou modérément agressif), à une propagation intergranulaire sous hydrogène, sans pourtant modifier les vitesses de propagation. Ceci suggère qu'il ne s'agit pas d'une rupture fragile, mais que, dans ces conditions, les joints de grains représentent le chemin plus approprié pour la propagation de la fissure. Nous pouvons supposer deux raisons principales qui conduisent à la propagation intergranulaire : soit les joints de grains sont plus enrichis en hydrogène, soit le mode de rupture en présence d'hydrogène est facilité sur les joints de grain (ou, au contraire, la propagation est rendue plus difficile à l'intérieur du grain à cause d'une surconcentration en hydrogène). Cette deuxième théorie pourrait expliquer bien le fait que, malgré le mode de rupture change totalement de la propagation sous air à celle sous hydrogène, les vitesses de propagation restent inchangées. Murakami *et al.* [134] ont proposé une modification à la théorie HELP, selon laquelle, en présence d'hydrogène, la taille de la zone plastique devient très petite, à cause d'une localisation du glissement des dislocations. Selon Murakami *et al.*, dans le cas d'une « sursaturation » en hydrogène, le glissement est fortement limité, ce qui ralentit les vitesses de propagation. Nous pouvons alors supposer que, à cause de la forte pression d'hydrogène et de la diffusivité élevée dans le fer pur, les grains du matériau sont surchargés en hydrogène. Dans ces conditions, la propagation sur les joints des grains pourrait être favorisée, ce qui explique le changement de modes de rupture sans modifications des vitesses de propagation.

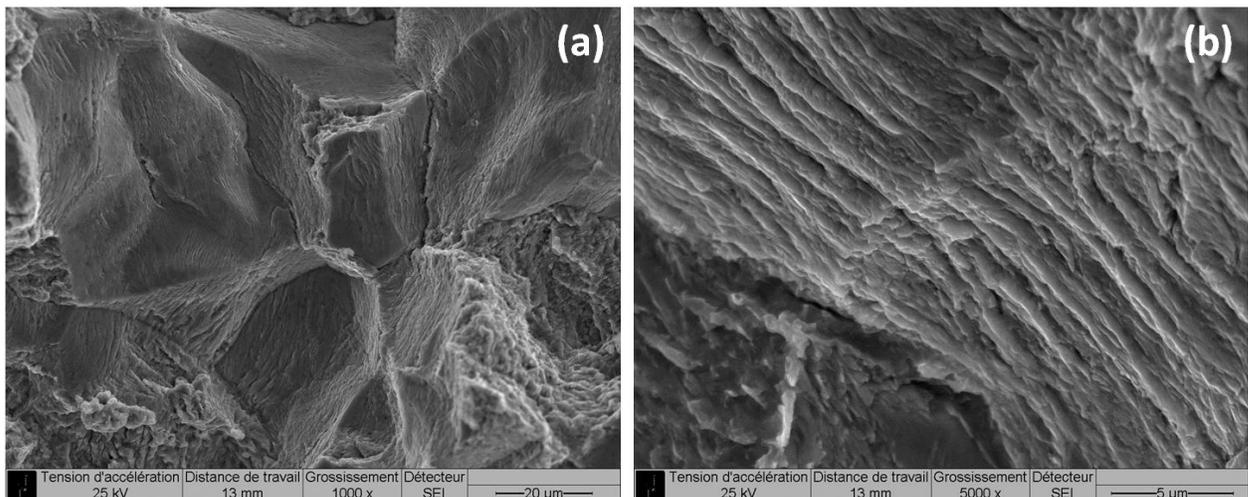


Figure 3 - 17 : Image des facettes intergranulaires qui présentent un marquage « plastique » important sur la surface (a) et grossissement x5000 (b). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

A forte valeur de  $\Delta K$  (à partir de 7  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ), la propagation redevient certes transgranulaire, cependant cette propagation présente un aspect différent de celui observé en environnement inerte, sous air ou sous azote. En effet, sous hydrogène à 9 MPa, les ruptures sont de type clivage, et la propagation suit des plans spécifiques, toujours globalement perpendiculaires à la direction

de chargement, et la surface de rupture apparaît plane. De plus, les facettes de clivage laissent apparaître de façon très nette les transitions entre grains adjacents (Figure 3 - 16d et Figure 3 - 18a), ce qui suggère que la propagation se fait sur des plans cristallographiques bien définis à l'intérieur du grain. En particulier, à un grossissement plus élevé (Figure 3 - 18b), on peut observer la fissure qui avance dans un grain, traverse le joint et continue dans le grain adjacent avec les mêmes mécanismes.

Si l'on compare cette image à la propagation sous environnement inerte, air ou azote (Figure 3 - 11b et d et Figure 3 - 14b), les surfaces de rupture apparaissent différentes. Bien que les vitesses de propagation restent inchangées, on remarque une activité plastique moins marquée que sous hydrogène. La fracture semble plus « superficielle » et lisse, avec des crêtes qui peuvent être associées à la plasticité.

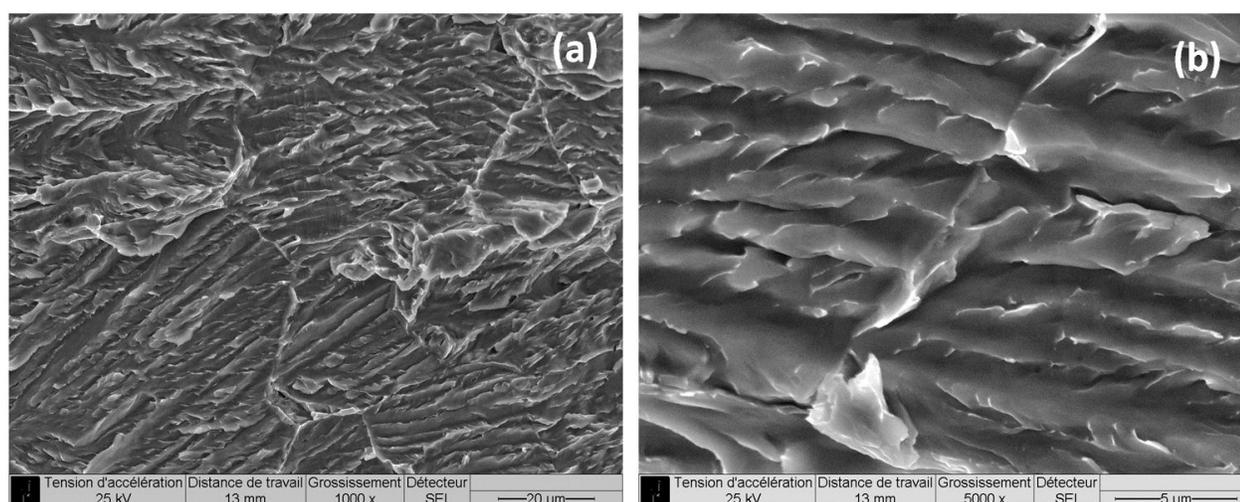


Figure 3 - 18 : Propagation transgranulaire à  $\Delta K=8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sous 9 MPa d'hydrogène. La fissure avance sur des plans cristallographiques bien définis à l'intérieur du grain, et laisse apparaître les joints de grains (a). A un grossissement plus élevé on peut observer une activité plastique limitée par rapport aux essais en environnement inerte (b). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

### 3.3.2 Etude de l'effet de la fréquence de sollicitation cyclique sous haute pression d'hydrogène gazeux

Afin de mettre en évidence un éventuel effet de l'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissures, des essais sous plus haute pression d'hydrogène gazeux (35 MPa) ont été effectués à température ambiante à rapport de charge  $R=0.1$ . En outre, différentes fréquences de sollicitation cyclique ont été testées, afin d'évaluer l'influence de ce paramètre sur les vitesses de propagation et sur les modes de rupture. La fréquence de 20 Hz a été choisie comme valeur maximale (surtout à cause des limites physiques de la machine). Dans la littérature on trouve de nombreux articles qui rapportent des variations des vitesses de propagation pour des fréquences en-dessous de 1 Hz [73,135,136]. Par conséquent, deux autres fréquences de chargement cyclique ont été choisies, à savoir 2 Hz et 0.2 Hz. La forme du signal de chargement est de type sinusoïdal.

L'influence de la pression d'hydrogène gazeux en lien avec la fréquence est illustrée par la Figure 3 - 19, qui présente l'évolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue comparées aux résultats obtenus sous air et sous vide.

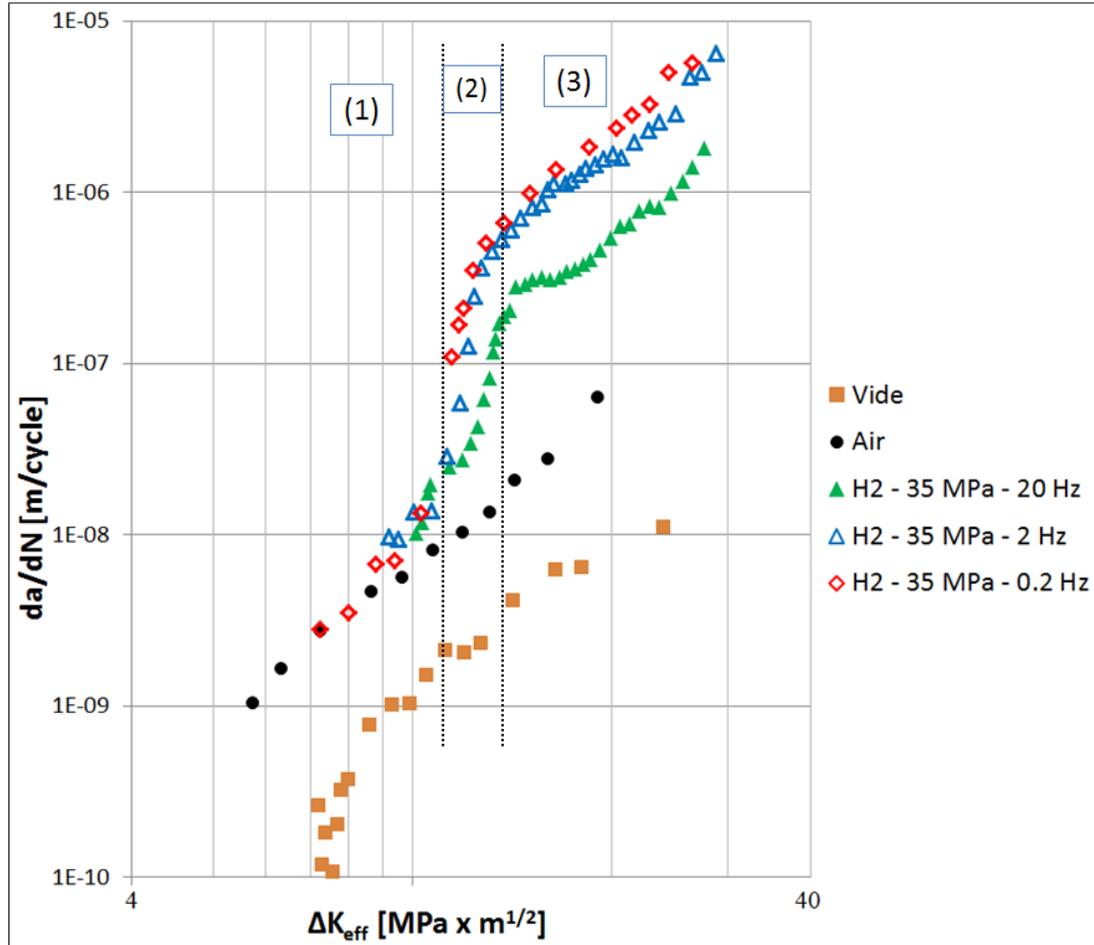


Figure 3 - 19 : Evolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue sous 35 MPa d'hydrogène gazeux pour différentes fréquences de chargement cyclique, comparées aux résultats obtenus à l'air et sous vide

Si l'on compare les courbes obtenues sous l'air et sous hydrogène à fort pression dans l'intervalle de  $\Delta K$  étudié, on peut observer trois zones distinctes :

1. A faible valeur de  $\Delta K$ , jusqu'à environ  $\Delta K = 11 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , les vitesses de propagation sont similaires ou seulement légèrement plus élevées que celles relevées sous air, et ce pour toutes les fréquences de chargement examinées.
2. Dans un intervalle restreint, entre environ 11 et 13-14  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , on observe une transition abrupte, qui se traduit par une augmentation des vitesses d'un ordre de grandeur pour la fréquence la plus élevée (20 Hz), jusqu'à un rapport de 30 pour les deux autres (2 et 0.2 Hz).
3. Au-delà de cette transition, les vitesses suivent une courbe présentant une pente comparable à celle obtenue sous air jusqu'à la rupture.

Dans la suite nous allons analyser successivement chacun de ces trois domaines.

Tout d'abord, à faible  $\Delta K$ , on ne remarque pas d'influence de la pression d'hydrogène (jusqu'à 35MPa) ou de la fréquence de chargement sur les vitesses de propagation de fissures, jusqu'à une fréquence de 0.2 Hz. Pourtant, dès l'introduction de l'hydrogène dans la chambre, le mode de propagation devient intergranulaire dans la propagation sous hydrogène, et ce pour n'importe quelle fréquence, comme le montre la Figure 3 - 20.

Comme expliqué dans le paragraphe précédent, une certaine zone en pointe de fissure peut être surchargée en hydrogène, ce qui limite le glissement des dislocations. La rupture en présence d'hydrogène est donc limitée à l'intérieur du grain, ce qui peut expliquer le passage à une propagation intergranulaire tout en gardant les mêmes vitesses de propagation.

Le mode de rupture semble dépendre principalement de la valeur de  $\Delta K$  appliquée, donc de l'état de contrainte en pointe de fissure, et non du temps d'exposition. En fait, la fréquence ne semble pas avoir beaucoup d'influence à cet égard, peut-être à cause d'un coefficient de diffusion suffisamment élevé qui permet à l'hydrogène de diffuser rapidement en pointe de fissure jusqu'à une profondeur suffisante, même pour des fréquences élevées. Cela signifie que la distance de pénétration de l'hydrogène est supérieure à l'avancée de la fissure déjà pour la fréquence de chargement la plus élevée (temps de diffusion limité). Les simulations (objet de la troisième partie du manuscrit) permettent de mettre en évidence la variation de la zone affectée par l'hydrogène en fonction de la fréquence (ou du temps de diffusion), de la contrainte hydrostatique et du coefficient de diffusion. Pour un acier martensitique (coefficient de diffusion  $D_L = 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s) à  $\Delta K=10$  MPa x m<sup>1/2</sup> nous avons calculé une distance de pénétration d'environ 10 µm après 10 secondes de chargement à 20 Hz. Avec un coefficient de diffusion beaucoup plus élevé, le fer pur peut garantir une distance de pénétration beaucoup plus importante, ce qui suffit largement pour affirmer que, pour ces vitesses de propagation, la fissure avance dans une zone fortement enrichie en hydrogène. Tout cela confirme notre hypothèse, c'est-à-dire que même pour une fréquence élevée une certaine quantité d'hydrogène peut pénétrer dans le matériau et changer les modes de rupture.

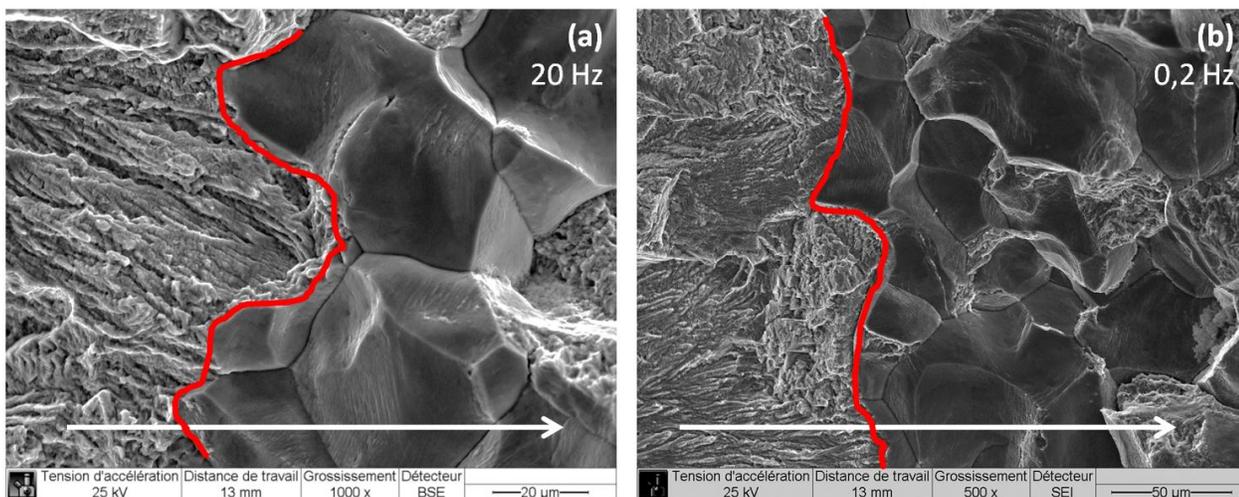


Figure 3 - 20 : Début de la propagation sous hydrogène (repéré par la ligne rouge) : le mode de rupture devient immédiatement intergranulaire pour toutes les fréquences analysées (20 Hz (a) et 0.2 Hz (b)). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

On observe donc une propagation intergranulaire pour des faibles vitesses de propagation, comme déjà observé sous une pression plus faible de 9 MPa d'hydrogène. On peut conclure que ce mode de rupture ne correspond pas forcément à une fragilisation importante du matériau en pointe de fissure. La présence de marquages sur les surfaces des grains dénote, encore une fois, une activité plastique sur les joints de grains avant la rupture.

La Figure 3 - 21 montre des observations à fort grandissement de ces marquages sur les facettes intergranulaires. La variation de la fréquence dans l'intervalle considéré n'a que peu d'influence sur l'allure des marquages. On a l'impression qu'ils occupent une portion de la surface plus élevée à haute fréquence, mais c'est difficile de le quantifier. Par contre la distance entre les marquages reste inchangée, environ 0.5  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à un marquage tous les 100 cycles en moyenne.

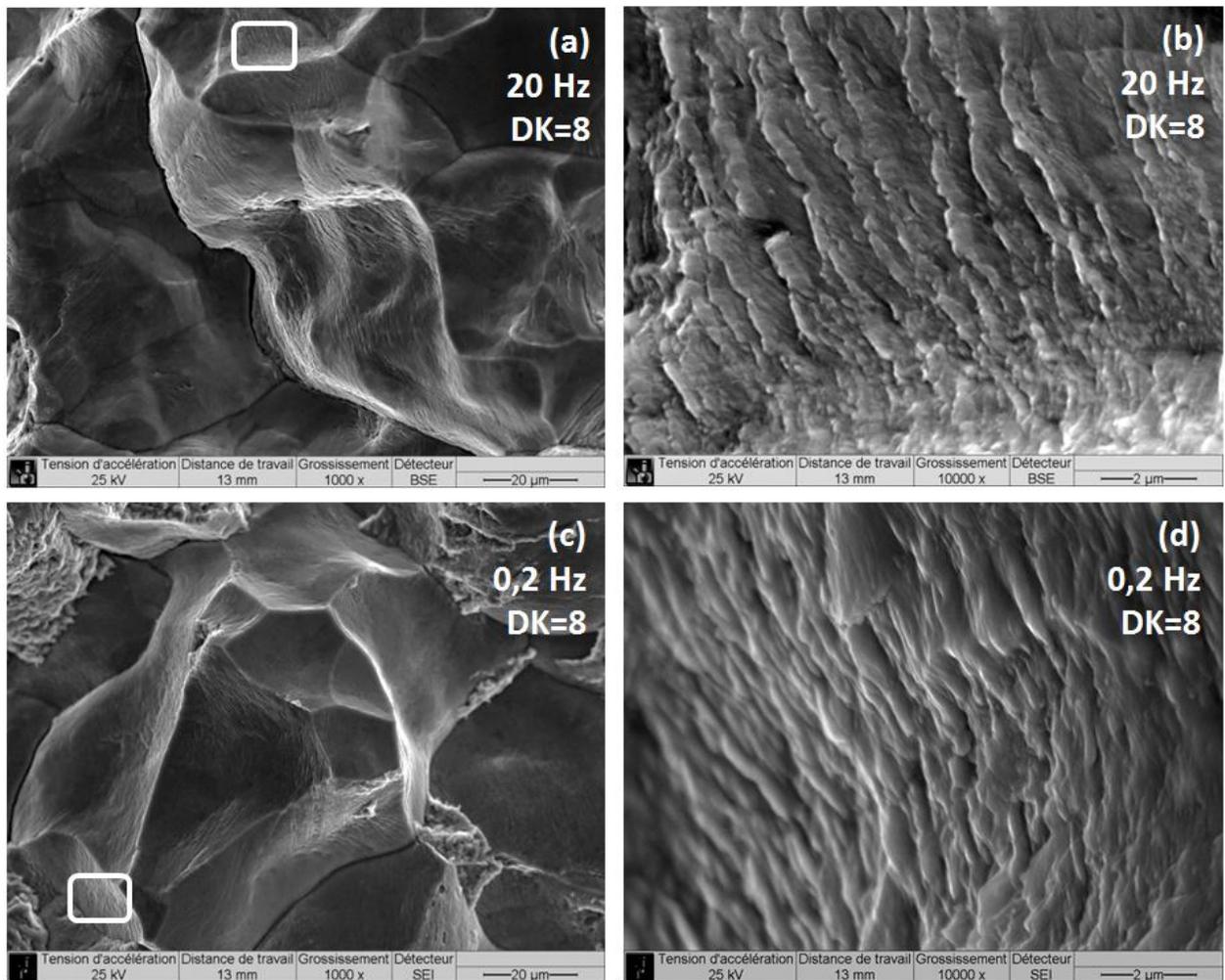


Figure 3 - 21 : Observations des marquages plastiques sur les facettes intergranulaires à 20 Hz ((a) et à fort grandissement (b)) et à 0.2 Hz ((c) et à fort grandissement (d)) . La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

Dès lors, si on peut imaginer que la propagation intergranulaire soit due à un mécanisme de rupture de type HEDE, c'est-à-dire une décohésion de la microstructure au niveau des joints de grain, ces observations nous amènent à considérer l'activité plastique comme partie fondamentale du processus de propagation de la fissure sous hydrogène. Les motivations d'une telle propagation peuvent être expliquées avec les mécanismes AIDE proposé par Lynch [60,83]. Il suppose que les populations d'hydrogène adsorbées en surface et en subsurface du matériau diminuent localement l'énergie de cohésion des liaisons interatomiques et facilitent la nucléation et l'émission de dislocations depuis la surface. Par conséquent, en présence d'hydrogène, les joints de grain peuvent représenter le parcours préférentiel pour la propagation de la fissure à cause d'une plus faible énergie de cohésion. Par contre, la propagation entraîne une forte déformation plastique, à cause de l'adsorption de l'hydrogène qui facilite l'émission des dislocations, et qui produit les marquages plastiques aux joints de grains.

Dans le régime suivant, correspondant à la transition de vitesses identifiée dans la Figure 3 - 19, la propagation devient soudainement transgranulaire, comme montré dans la Figure 3 - 22 pour l'essai mené à 0.2 Hz. Dans ce cas, cette transition se produit pour une valeur de  $\Delta K$  d'environ 13 MPa x m<sup>1/2</sup> (ce qui correspond à une valeur de  $\Delta K_{\text{eff}}$  d'environ 11 MPa x m<sup>1/2</sup>), c'est-à-dire juste avant l'augmentation des vitesses de propagation. La surface présente alors des facettes de clivage, similaires à celles déjà observées pour la pression de 9 MPa à des valeurs élevées de  $\Delta K$ .

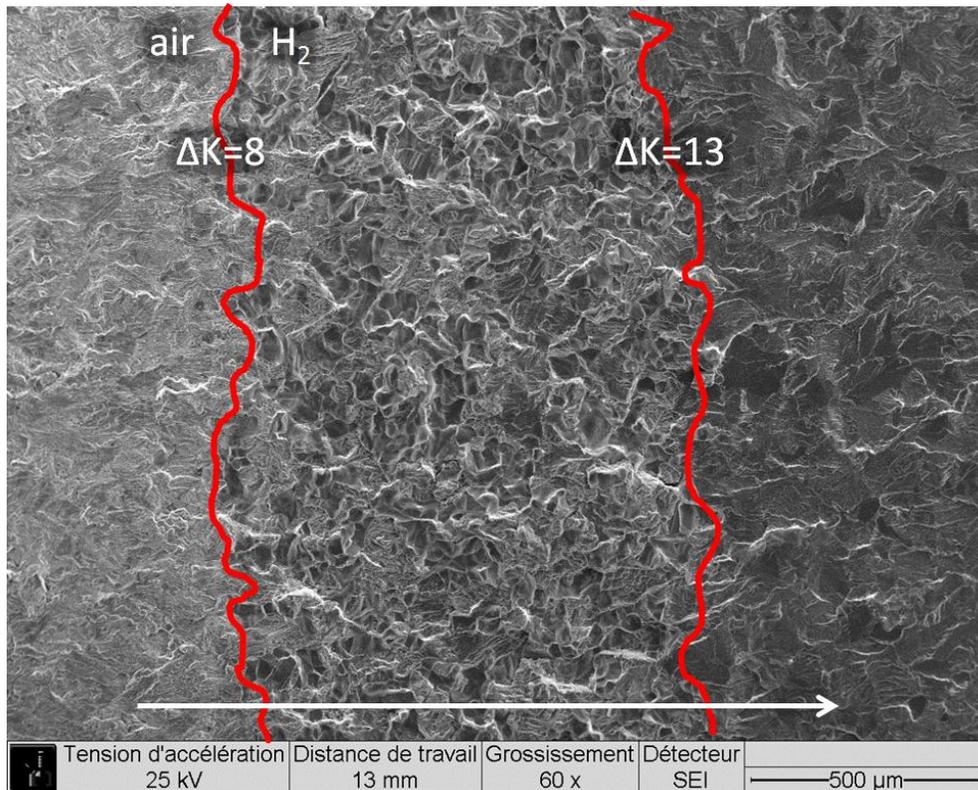


Figure 3 - 22 : Observation des variations des modes de rupture : passage à la propagation intergranulaire à  $\Delta K = 8$  MPa x m<sup>1/2</sup>, et passage à une propagation transgranulaire à  $\Delta K = 13$  MPa x m<sup>1/2</sup>. La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

Dans le cas de propagation intergranulaire, les marquages observés sur les joints de grain ont une distance correspondant à quelques centaines de cycles. Nous ne savons pas si la fissure avance chaque cycle, ou à des « grands pas » successifs qui laissent les marquages observés. On peut supposer une accumulation de l'hydrogène, qui « prépare » le chemin pour l'avancement de la fissure sur les joints de grain. Par contre, pour des valeurs de  $\Delta K$  et de vitesses de propagation plus élevées, il n'y a plus les conditions pour une propagation intergranulaire, et la fissure suit un chemin plus direct, à l'intérieur des grains. L'explication serait à chercher dans l'interaction entre hydrogène et microstructure, qui évolue à cause d'une augmentation de la contrainte hydrostatique en avant de la pointe et des vitesses de propagation.

La Figure 3 - 23 montre les fractographies obtenues pour les trois fréquences de sollicitation en correspondance d'une valeur de  $\Delta K$  de transition des vitesses de propagation ( $\Delta K_{\text{eff}} = 12 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Dans tous les cas, la propagation intergranulaire disparaît juste avant la transition, et les surfaces de rupture montrent des surfaces de clivage et quelques fissures secondaires.

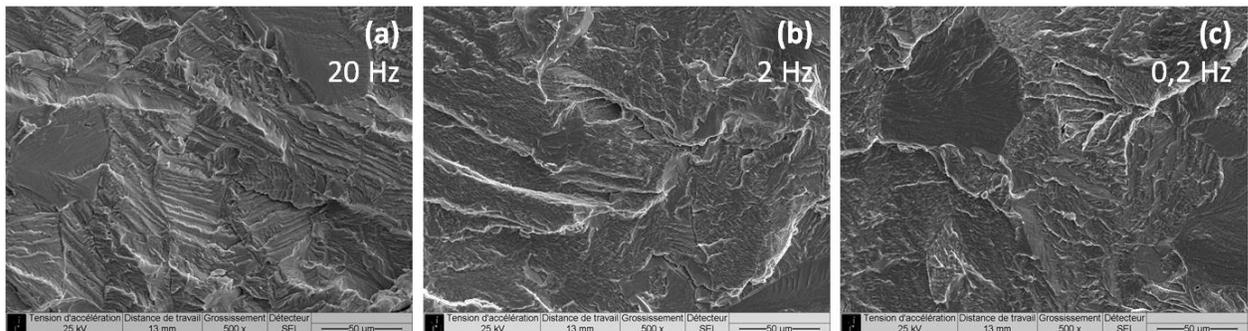


Figure 3 - 23 : Fractographies obtenues au moment de la transition des vitesses de propagation à 35 MPa pour les trois fréquences de sollicitation cyclique : 20 Hz (a), 2 Hz (b) et 0.2 Hz (c). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

On constate par ailleurs que la courbe de propagation obtenue à une fréquence de 0.2 Hz se superpose à celle obtenue à 2 Hz (Figure 3 - 19). Cela suggère une saturation de l'effet « hydrogène » sur les vitesses de propagation, c'est à dire que l'hydrogène qui diffuse en pointe de fissure à 2 Hz n'augmente plus même si l'on augmente d'un rapport 10 le temps mis à disposition de l'hydrogène pour diffuser. En effet, le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans ce matériau est élevé par rapport à d'autres microstructures [22]. Ceci est cohérent avec le concept de saturation de l'hydrogène en pointe de fissure, et l'absence consécutive de modifications des mécanismes de rupture pour des variations de la fréquence au-dessous de 2 Hz. Par contre, des modifications des mécanismes peuvent être observées à fréquences élevées, où l'hydrogène n'a pas le temps pour pénétrer suffisamment dans le matériau. En effet, les observations fractographiques réalisées pour l'essai à 20 Hz (Figure 3 - 23a) montrent un aspect un peu plus fragile par rapport aux fréquences plus faibles, avec des grains coupés de façon nette, et d'autres où on observe un clivage sur des plans parallèles dans le grain pour former des marches. Ce phénomène peut être alors expliqué par une combinaison des mécanismes HEDE et AIDE. A 20 Hz (temps limité pour la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure), le mécanisme de décohesion (HEDE) est prédominant. A plus faible fréquence, une quantité

d'hydrogène supérieure est adsorbé en pointe de fissure, et cela cause une augmentation de l'activité plastique, avec émission localisée de dislocations (AIDE).

Dans le troisième régime, les surfaces de rupture changent progressivement de morphologie au fur et à mesure que le niveau de  $\Delta K$  augmente. La rupture reste transgranulaire, mais avec l'augmentation des vitesses on peut noter que des marquages de type « stries » apparaissent et deviennent de plus en plus nettes. En particulier, la Figure 3 - 24 montre les fractographies des trois essais conduits à 35 MPa pour les fréquences de 20 Hz, 2 Hz et 0.2 Hz (respectivement a, b et c) et à une valeur de  $\Delta K = 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Les essais à faible fréquence, qui présentent des vitesses de propagation d'environ  $2 \times 10^{-6} \text{ m/cycle}$ , montrent des stries très bien définies, avec une distance interstrie d'environ  $2 \text{ } \mu\text{m}$ . Sur les surfaces produites à 20 Hz par contre, il n'est pas aussi évident d'observer des stries. Toutefois, en examinant attentivement les facettes de rupture produites à des valeurs de  $\Delta K$  plus élevée ( $\Delta K > 22 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ), il est possible d'observer des stries avec le même aspect (Figure 3 - 24d).

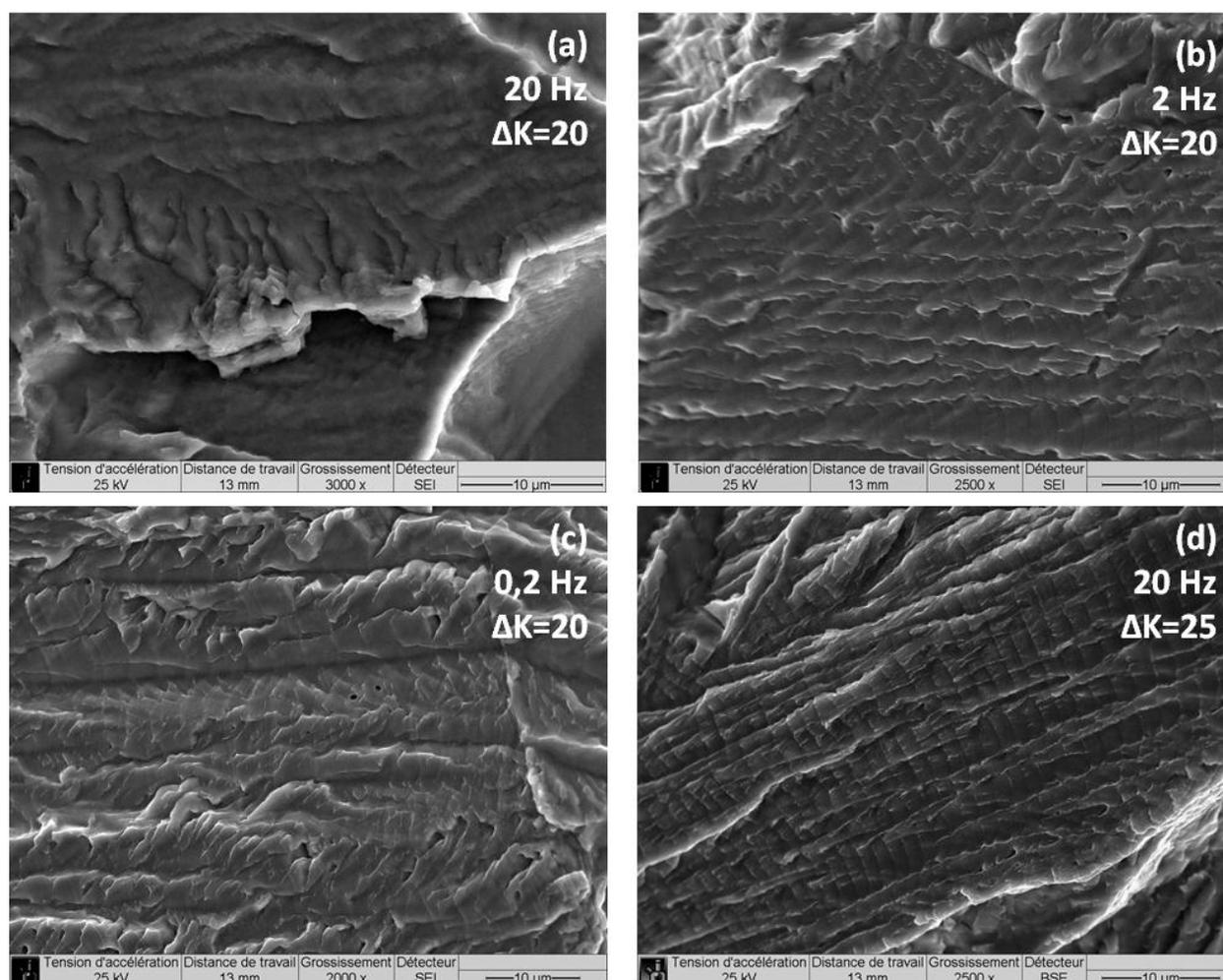


Figure 3 - 24 : Fractographies obtenues à  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sous 35 MPa d'hydrogène gazeux pour les trois fréquences de sollicitation cyclique : 20 Hz (a), 2 Hz (b) et 0.2 Hz (c) ; fractographie obtenue à  $\Delta K=25 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  à 20 Hz (d). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

Il semble que les modes de rupture dans cette troisième partie de propagation (après la transition des vitesses) soient liés à la fréquence, c'est-à-dire au temps dont l'hydrogène dispose pour diffuser en pointe de fissure. Il n'y a aucune différence entre les essais à 2 et 0.2 Hz, en raison du fait que la quantité d'hydrogène qui peut pénétrer dans le matériau à 2 Hz est suffisamment élevée pour apporter des modifications sur les vitesses et sur les modes de rupture, qui restent inchangés pour l'essai à 0.2 Hz. Par contre, l'essai à 20 Hz montre des différences dans les vitesses et, plus légèrement, dans les modes de rupture, et ceci est probablement lié à une quantité limitée d'hydrogène qui diffuse en pointe de fissure. Cette différence de quantité d'hydrogène peut générer de mécanismes de propagation différentes, et ceci a des effets sur l'avancement de la fissure et sur la plasticité. Il existe alors une quantité d'hydrogène « critique » au-dessous de laquelle les vitesses de propagation et les modes de rupture changent en fonction de la fréquence, et au-delà de laquelle les vitesses et les modes de rupture ne change plus.

En conclusion, à cette pression d'hydrogène (35 MPa), la quantité d'hydrogène qui diffuse en pointe de fissure dans le fer Armco est suffisante pour modifier les mécanismes de fissuration dans tout l'intervalle de fréquences et de  $\Delta K$  examiné, et en conséquence les cinétiques de fissuration. Les vitesses de propagation peuvent augmenter de dix à trente fois par rapport à celles sous air ambiant à partir d'une certaine valeur critique de  $\Delta K$ . Le changement du chemin de fissuration, qui devient intergranulaire sous hydrogène à des faibles valeurs de  $\Delta K$ , et transgranulaire à des valeurs de  $\Delta K$  plus élevées, peut être dû à la combinaison de la quantité d'hydrogène qui pénètre en pointe de fissure (lié à la pression et à la fréquence de chargement), et de l'état de contrainte.

Si l'on considère les trois intervalles identifiés en Figure 3 - 19, on peut conclure que :

1. Lorsque le niveau de  $\Delta K$  est faible, la fissure avance lentement ( $\Delta a$  petit). L'hydrogène a assez de temps pour diffuser en pointe de fissure. La fissure avance dans une zone déjà enrichie en hydrogène (Figure 3 - 25a), et la propagation est rendue plus difficile à l'intérieur des grains à cause d'une « surconcentration » en hydrogène en pointe de fissure (supposition basée sur les travaux de Murakami *et al.* [134]). La propagation passe alors par les joints de grain sans modification des vitesses de propagation, avec une activité plastique importante et un mode de rupture ductile (mécanisme HELP, plasticité localisée en pointe de fissure, sur les joints de grain et à l'intérieur du grain, ou mécanisme AIDE, avec émission de dislocation à partir de la pointe de la fissure, sur le joint de grain, Figure 3 - 25b).
2. A partir d'un certain niveau de  $\Delta K$  (début de la transition de vitesses), l'avancée de la fissure pour chaque cycle ( $\Delta a$ ) est plus importante, ce qui limite l'enrichissement en hydrogène en pointe de fissure (Figure 3 - 25c). La fissure commence à avancer sur des plans cristallographiques à l'intérieur du grain, avec une plasticité qui devient moins importante et des surfaces de rupture qui revêtent un aspect plus fragile.
3. Après la transition des vitesses de propagation, l'avancement de la fissure à chaque cycle ( $\Delta a$ ) est très important, plus grand de la zone qui peut être affectée par l'hydrogène

pendant le cycle (Figure 3 - 25d). Ce type de propagation montre des stries qui se corrélaient bien aux vitesses de propagation. A chaque cycle, la fissure commence à avancer dans une petite zone enrichie par l'hydrogène, comme par clivage. Ensuite, la propagation continue dans une zone qui n'est pas enrichie en hydrogène, et après un certain avancement, elle s'arrête. Dans ces conditions, un mécanisme de type HEDE serait peut-être prédominant.

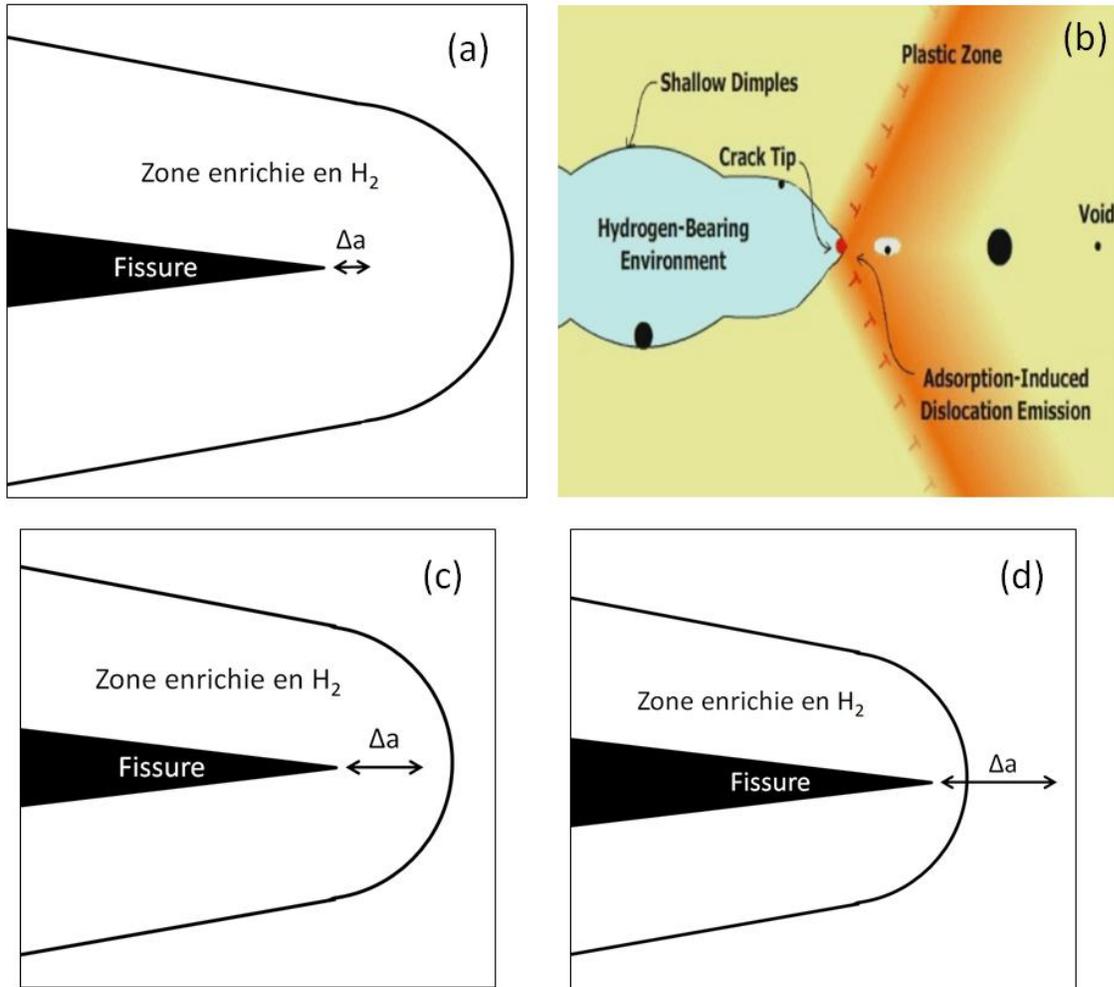


Figure 3 - 25 : Représentation des conditions de propagation en pointe de fissure : avancement intergranulaire dans une zone enrichie en hydrogène (a), représentation du mécanisme AIDE proposé par Lynch et al. [63] (b), avancement transgranulaire dans une zone riche en hydrogène (c), avancement transgranulaire à fort vitesse de propagation, plus grand de la zone qui peut être affectée par l'hydrogène (d)

Afin de mieux comprendre et expliquer nos résultats, nous les avons comparés à des essais de propagation de fissures issus de la littérature.

Amaro *et al.* [135], Drexler *et al.* [73] et Slifka *et al.* [137] ont réalisé des essais de propagation de fissures sous haute pression d'hydrogène gazeux sur différentes nuances d'aciers de pipe API X52, API X70 et API X100. Il s'agit d'aciers à faible teneur en carbone, laminés à froid. En particulier, l'API X52 et X70 ont été testés sous 34 MPa d'hydrogène gazeux. La microstructure

est caractérisée par la présence de ferrite et de perlite dans le cas de l'acier X52, et d'un mélange de bainite et de perlite dans le X70. Les fréquences de chargement cyclique sont de 1 et 0.1 Hz, sans que pour autant des différences significatives ne soient notées sur les vitesses de propagation et sur les modes de rupture. Ils supposent que cela est dû à une saturation de l'hydrogène en pointe de fissure à 34 MPa même pour la fréquence la plus élevée. Nous avons comparé les vitesses de propagation sous air et sous hydrogène à nos résultats sous 35 MPa et faible fréquence dans la Figure 3 - 26.

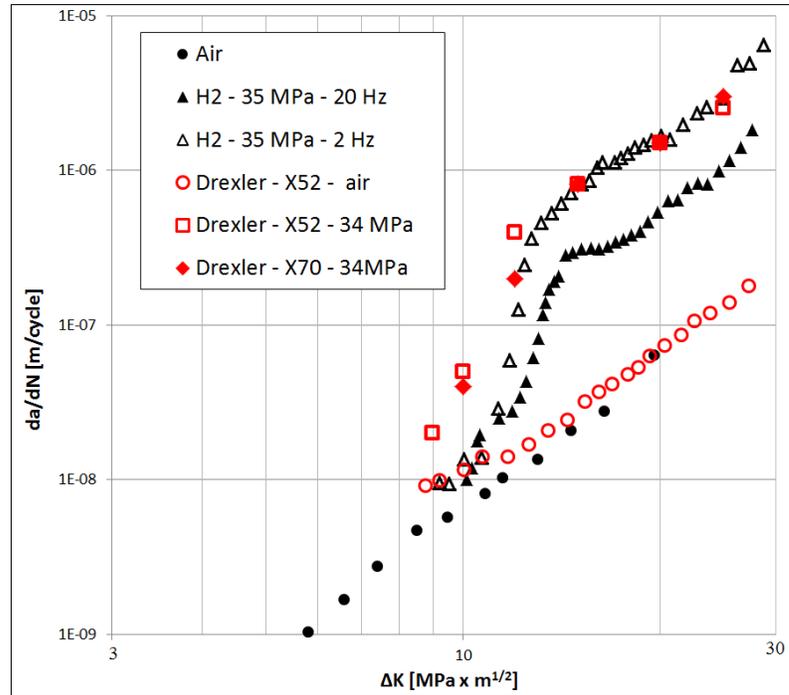


Figure 3 - 26 : Comparaison des vitesses de propagation sous hydrogène avec les résultats obtenus par Drexler et al. [73]

Les résultats de Drexler *et al.* montrent que l'hydrogène peut faire augmenter de plus d'un ordre de grandeur les vitesses de propagation. En outre, comme dans la présente étude, ces auteurs ont mis en évidence un « genou » sur la courbe des vitesses de propagation, dans l'intervalle de  $\Delta K$  compris entre 12 et 14  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$  dans lequel les vitesses de propagation passent de valeurs similaires aux vitesses sous air à des valeurs de plus d'un ordre de grandeur plus élevées. Ces résultats sont similaires à ceux observés par Cialone et Holbrook [14] sur des aciers API X42 et X70. Les observations microfractographiques révèlent par ailleurs un changement des modes de rupture équivalent à nos observations. Ainsi, avant le régime transitoire, le mode de rupture est principalement intergranulaire. Un changement vers un mode de rupture transgranulaire au moment de la transition des vitesses de propagation est ensuite observé. Ces auteurs affirment que ce phénomène est dû à la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure. Pour des faibles vitesses de propagation, la fissure avance dans une région où l'hydrogène a eu le temps de diffuser, et la propagation est intergranulaire. A des fortes vitesses de propagation, la fissure va au-delà de cette région affectée par l'hydrogène, et la propagation redevient transgranulaire.

Nous avons enfin comparé nos résultats sur l'effet de la fréquence avec ceux de Wada [136] obtenus sur un acier 435-B (spécifications JIS) sous 45 MPa d'hydrogène, à  $R=0.1$  et à température ambiante. La Figure 3 - 27a montre nos résultats comparés à ceux de Wada sous air et sous hydrogène à 3 Hz de fréquence de sollicitation cyclique. Les courbes de propagation montrent un comportement similaire à nos observations, avec une augmentation importante des vitesses de propagation (d'un facteur environ 50) à partir d'une valeur de  $\Delta K = 12-13 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Nous pouvons supposer qu'au-dessous de cette valeur, les vitesses sont proches des valeurs sous air. Par contre l'observation des surfaces de rupture aurait permis d'analyser le changement des mécanismes de rupture et expliquer les observations sur les vitesses de propagation.

D'autres fréquences de chargement ont été testées par Wada, à savoir 0.5 Hz, 0.067 Hz et 0.0067 Hz. En dessous de  $K_{max}=35 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (qui correspond, pour le rapport de charge  $R=0.1$ , à  $\Delta K=31.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ), la réduction de la fréquence n'a aucune impact sur les vitesses de fissuration (Figure 3 - 27b), ce qui suggère une saturation des vitesses dès 3 Hz. A partir de cette valeur, ils ont observé une augmentation des vitesses de propagation avec la réduction de la fréquence.

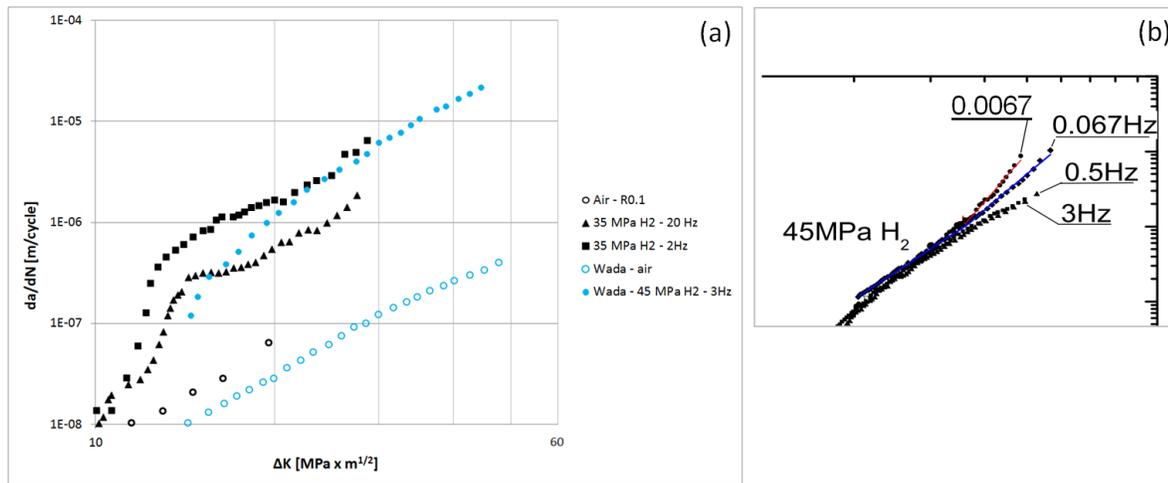


Figure 3 - 27 : Comparaison des vitesses de propagation sous hydrogène avec les résultats obtenus par Wada [136]

### 3.3.3 Influence de la forme du signal de sollicitation cyclique

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré l'effet de la fréquence de sollicitation cyclique sur l'évolution des vitesses de propagation de fissures et sur les modes de rupture. En particulier nous avons mis en évidence une différence de vitesses entre 20 Hz et 2 Hz. Toutefois ces essais ont été réalisés avec un signal de sollicitation cyclique de forme sinusoïdale. Or il est établi que pour une fréquence donnée la forme du signal peut également influencer la vitesse de propagation. Plus particulièrement, il convient d'identifier quel paramètre contrôle l'effet sur les vitesses de propagation : période du cycle ou, comme montré par exemple par Knop et Lynch [61,138] pour la fissuration sous protection cathodique, le temps de montée en charge pendant le cycle. Par contre il n'y a que peu de données sous hydrogène gazeux, et elles ne montrent aucune différence entre une forme d'onde sinusoïdale ou carrée [139,140].

La Figure 3 - 28 montre la forme du signal de chargement cyclique choisi, c'est-à-dire un signal en dent de scie. La période de cycle est égale à celle du signal sinusoïdal de 2 Hz, soit 0.5 secondes, mais la montée en charge est très rapide (« rise time » égal au signal de 20 Hz) et la descente lente. La figure montre le cas particulier de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et  $R = 0.1$ .

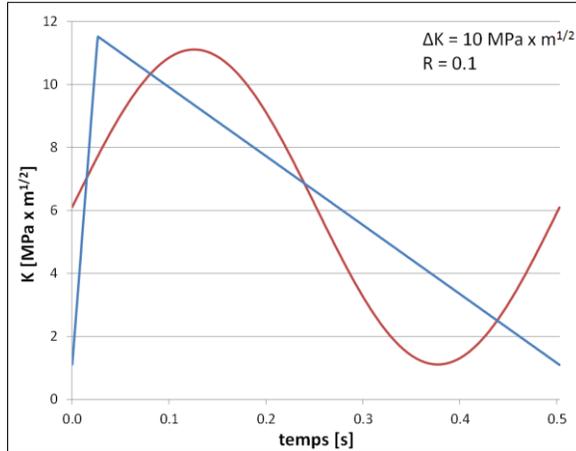


Figure 3 - 28 : Forme du signal de chargement cyclique : signal triangulaire en dent de scie comparé au signal sinusoïdal

Les résultats obtenus sous 35 MPa d'hydrogène gazeux sont présentés Figure 3 - 29 et sont comparés aux autres courbes obtenues sous cette pression.

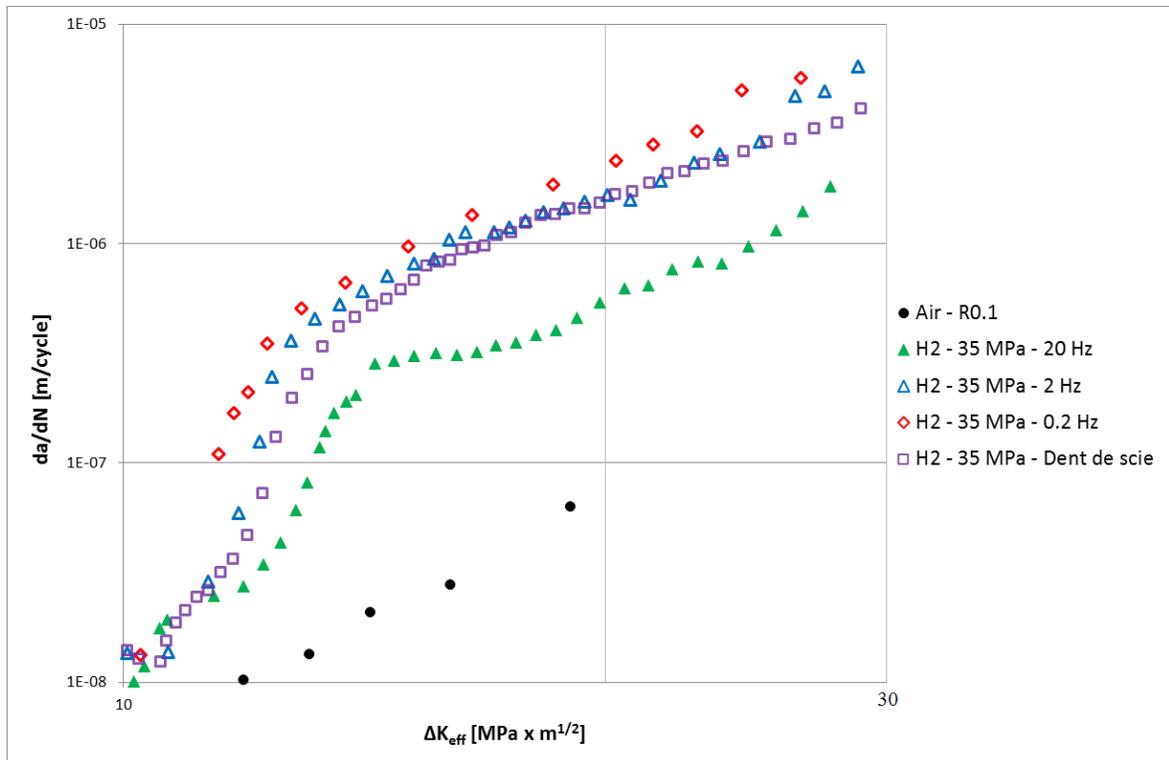


Figure 3 - 29 : Evolution des vitesses de propagation de fissures sous 35 MPa d'hydrogène gazeux en fonction de la fréquence de sollicitation cyclique et de la forme du signal de sollicitation (sinusoïdal ou dent de scie)

Les résultats de la Figure 3 - 29 suggèrent que dans le fer ARMCO, sous hydrogène gazeux, c'est la durée du cycle qui contrôle l'effet de l'hydrogène, indépendamment de la forme du signal. En effet, la courbe de propagation se superpose parfaitement à celle obtenue pour l'essai à 2 Hz sous signal sinusoïdal.

Les surfaces de rupture produites à différentes valeurs de  $\Delta K$  montrent un aspect similaire à celui observé pour l'essai mené à 2 Hz sous signal sinusoïdal. La Figure 3 - 30a montre que la propagation est initialement intergranulaire, jusqu'à une valeur de  $\Delta K$  d'environ  $12 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Les marquages plastiques sont également présents sur les joints de grain. Au-delà de cette valeur, la propagation devient transgranulaire, comme le montre la Figure 3 - 30b. On peut remarquer sur le bas de la Figure 3 - 30b une propagation transgranulaire par quasi-clivage, et dans le haut on peut voir des stries, avec un pas de quelque dixième de micron, ce qui correspond bien aux vitesses de propagation. Cette image représente alors la fin de la transition, où on passe de l'avancement à l'intérieur de la zone enrichie par l'hydrogène (qui donne le quasi-clivage), à la propagation dans le régime accéléré, où la fissure avance au-delà de la zone enrichie en hydrogène (et marque la surface avec des stries). A fort  $\Delta K$  la propagation est ici aussi rapide que pour l'essai à 2 Hz, et est caractérisée par des facies de clivage, avec des stries bien marquées dont l'espacement correspond aux vitesses de propagation macroscopiques (Figure 3 - 30c).

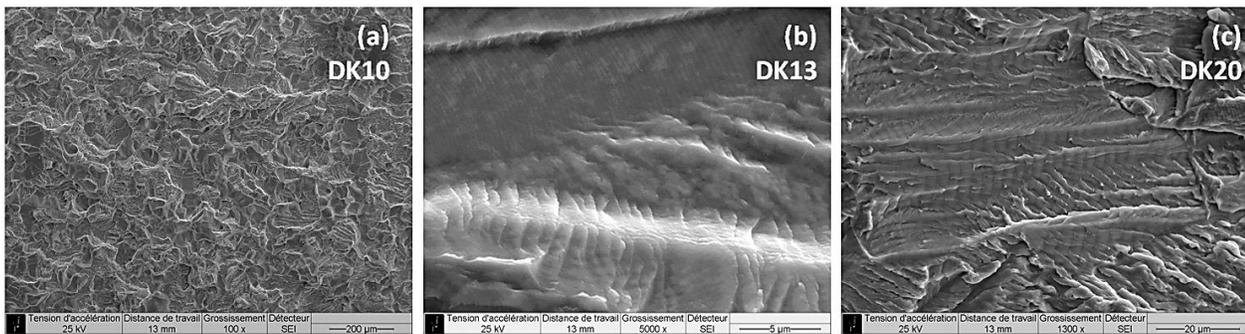


Figure 3 - 30 : Fractographies obtenues pour l'essai sous 35 MPa d'hydrogène gazeux et forme du signal à dent de scie à  $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (a),  $\Delta K=13 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b) et  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (c). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

L'influence du temps de montée peut s'expliquer sur la base de la cinétique de compétition entre diffusion d'hydrogène en pointe de fissure et l'avancement de celle-ci. Dans notre cas, la propagation est indépendante du temps de montée, donc on peut imaginer une cinétique d'absorption de l'hydrogène constante dans le chargement, et un avancement de la fissure indépendant de la vitesse de montée.

En conclusion on peut dire que, sous hydrogène, la période de cycle est le paramètre clé, parce que, même durant la phase de décharge, l'hydrogène continue à diffuser en pointe de fissure. Dans la montée en charge suivante, la fissure progresse donc au sein d'une zone enrichie en hydrogène, et ceci expliquerait le fait que la vitesse de propagation est pilotée par le temps de cycle.

La Figure 3 - 31 compare nos résultats à ceux obtenus par Knop *et al.* [61] à une valeur  $\Delta K=20$  MPa x m<sup>1/2</sup>, soit au-delà de la transition de vitesses. Knop propose que l'effet de la période du cycle sur les vitesses de propagation est sigmoïdale, c'est-à-dire qu'il y a 2 plateaux aux fortes et faibles périodes de cycle, séparés par un transitoire. Au-dessous d'une certaine valeur de la période, il n'y a pas d'effet de l'hydrogène sur les vitesses ; dans un certain intervalle intermédiaire, une transition des vitesses vers des valeurs plus élevées est observée ; et au-dessus d'une certaine valeur les vitesses sont stables, à cause d'un effet saturant.

Cette analyse est en accord avec les résultats obtenus à 2 et 0.2 Hz (les courbes se superposent). Toutefois on ne peut pas confirmer pour le résultat à faible période de cycle. En effet le graphe de Figure 3 - 31 suggère que, pour une fréquence suffisamment élevée, les vitesses sous hydrogène devrait s'approcher des vitesses sous air. En effet la courbe à 20 Hz montre des vitesses de propagation inférieures de celles observées à fréquence plus faible. Nous n'avons pas le moyen de monter encore en fréquence sous hydrogène, par exemple 200 Hz. Par contre le fait d'avoir des vitesses similaires à faible  $\Delta K$  nous laisse supposer que cela serait tout à fait possible.

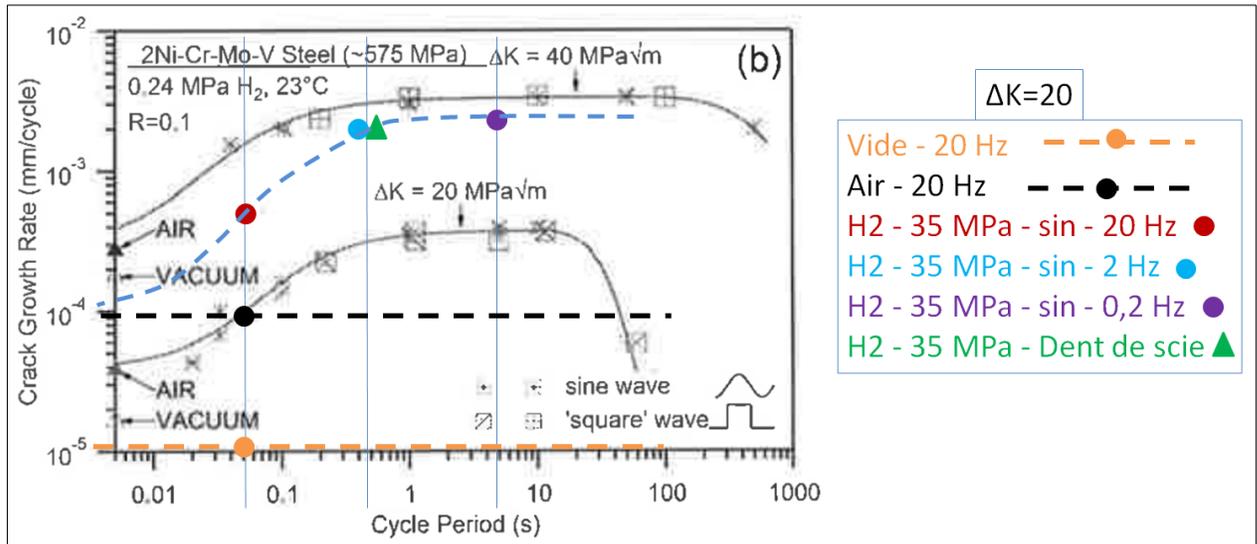


Figure 3 - 31 : Comparaison des vitesses de propagation sous hydrogène à  $\Delta K=20$  MPa x m<sup>1/2</sup> en fonction du temps de cycle avec les résultats obtenus par Knop *et al.* [61]

Un type d'essai différent pourrait être réalisé avec un signal de chargement trapézoïdal, avec un maintien de la charge maximale  $K_{max}$  pendant une très grande partie du cycle. Ceci permettra de dissocier des effets « dynamiques » (synergie déformation-hydrogène) des effets « statiques » (effet de la contrainte hydrostatique sur la cinétique de transport de l'hydrogène en pointe de fissure)

### 3.3.4 Influence de la pression d'hydrogène

Compte tenu de l'effet d'une forte pression d'hydrogène gazeux (35 MPa) sur les vitesses de propagation et sur les modes de rupture, et en considérant l'influence de la fréquence de sollicitation cyclique, nous avons décidé de réaliser deux essais de fissuration sous une pression

d'hydrogène plus faible, 3.5 MPa, à deux fréquences de chargement cyclique, 20 et 2 Hz (signal de sollicitation sinusoïdale). L'influence de la pression d'hydrogène est illustrée par la Figure 3 - 32, qui présente les vitesses de propagation de fissure dans l'hydrogène pour les deux différentes pressions, ainsi que les courbes sous air et sous vide.

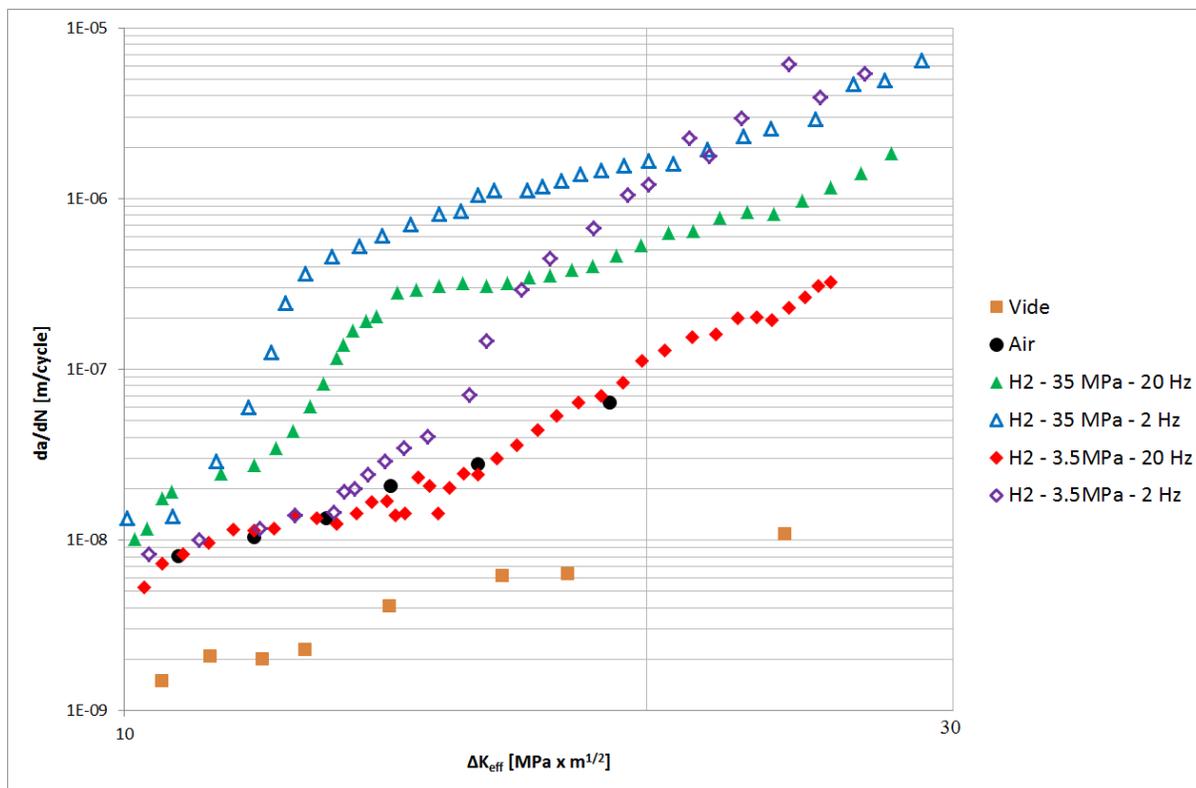


Figure 3 - 32 : Evolution des vitesses de propagation de fissures en fonction de la pression d'hydrogène gazeux (35 et 3.5 MPa) pour une fréquence de sollicitation cyclique de 20 et 2 Hz

Si l'on compare les courbes obtenues dans l'air et sous hydrogène à faible pression (3.5 MPa) et fréquence de 20 Hz, on observe que les vitesses de propagation sont similaires dans l'intervalle de  $\Delta K$  étudié. Toutefois, bien que les pentes des courbes  $da/dN - \Delta K$  soient similaires, des différences sont notées sur les modes de rupture. La Figure 3 - 33 montre l'évolution des modes de rupture en fonction de  $\Delta K$ . Ainsi la Figure 3 - 33a illustre le début de la propagation sous 3.5 MPa d'hydrogène à  $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et 20 Hz. Bien que l'effet de l'hydrogène sur les vitesses de propagation soit négligeable, on observe un mode de rupture qui devient intergranulaire dès le passage sous hydrogène. Si l'on compare avec les observations réalisées à 35 MPa, on remarque un aspect similaire des surfaces intergranulaires. Toutefois celles-ci recouvrent un pourcentage inférieur de la surface à faible pression (environ 50% contre environ 80% à 35 MPa). La propagation devient ensuite transgranulaire, pour une valeur de  $\Delta K$  légèrement plus élevée par rapport à la pression de 35 MPa (environ  $14 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Les surfaces montrent des faciès de quasi clivage et un aspect plutôt ductile (Figure 3 - 33c) jusqu'à environ  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (Figure 3 - 33e), où les surfaces deviennent plus fragiles avec des faciès de clivage et des stries comme observée déjà à plus forte pression (à partir d'une valeur de  $\Delta K$  initiale inférieure).

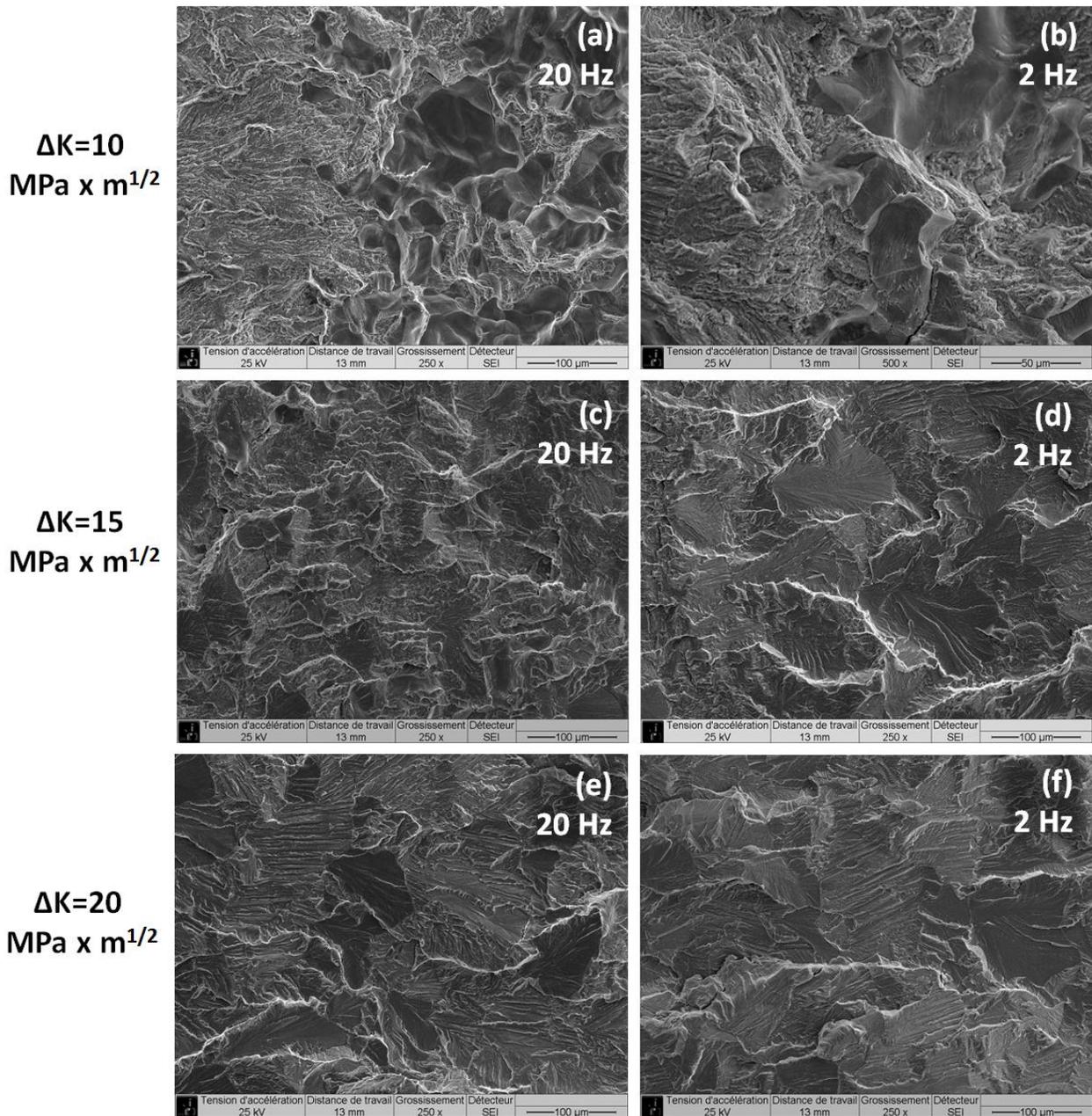


Figure 3 - 33 : Fractographies obtenues pour les essais sous 3.5 MPa d'hydrogène gazeux à  $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (20 Hz (a) et 2 Hz (b)),  $\Delta K=15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (20 Hz (c) et 2 Hz (d)), et  $\Delta K=20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (20 Hz (e) et 2 Hz (f)). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite

L'essai mené sous 3.5 MPa de pression et fréquence de 2 Hz montre des résultats similaires à ceux obtenus à fréquence ou à pression plus élevée, selon le cas. En particulier, à faible  $\Delta K$ , on retrouve une fraction surfacique significative occupée par de facettes intergranulaires (Figure 3 - 33b). Leur aspect montre cependant une activité plastique très importante par rapport à ce qui est observé à 20 Hz, avec des marquages beaucoup plus prononcés. Par contre le pourcentage de fracture intergranulaire sur la surface est relativement bas, moins de 50%. La transition vers une propagation transgranulaire est observée pour un niveau de  $\Delta K$  plus faible qu'à 20 Hz,

approximativement le même niveau qu'à la pression de 35 MPa. On peut donc supposer que cette transition est contrôlée par l'exposition à l'hydrogène, c'est à dire un effet combiné de la pression d'hydrogène (donc la concentration en surface) et du temps d'exposition (donné par la fréquence). En outre, les surfaces de rupture ont une apparence fragile (Figure 3 - 33d et f) et les marquages dans ce cas deviennent des stries (comme sous 35 MPa d'hydrogène).

En conclusion l'effet d'une pression d'hydrogène modérée sur les modes de rupture est plus important que celui suggéré par l'influence sur les vitesses de propagation. En particulier, l'essai réalisé à faible fréquence montre des surfaces de rupture très semblables à celles observées sous haute pression (35 MPa), sans que les vitesses de propagation ne soient modifiées de façon conséquente. Par contre le pourcentage de propagation intergranulaire à faible  $\Delta K$  est limité, probablement à cause d'une concentration d'hydrogène limitée en pointe de fissure, ce qui limite la mise en œuvre d'un mode de rupture intergranulaire sous hydrogène. A la fréquence de 20 Hz l'on réduit le temps dont l'hydrogène dispose pour diffuser en pointe de fissure. Cela affecte directement les vitesses de propagation, qui se superposent à l'essai sous air dans tout l'intervalle étudié. Les modes de rupture sont en outre eux aussi influencés. Ainsi à faible valeur de  $\Delta K$  on retrouve encore une propagation intergranulaire en alternance avec un mode transgranulaire. Aux valeurs moyennes de  $\Delta K$  les surfaces sont transgranulaires, mais avec un aspect ductile, analogue aux surfaces obtenues sous air. Enfin, seulement à fort  $\Delta K$  on retrouve du clivage plus net, similaire aux surfaces observés sous haute pression d'hydrogène.

Si l'on considère les observations faites par Knop *et al.* [61] et présentées en Figure 3 - 31 et si on compare les résultats obtenus sous faible pression d'hydrogène, on peut voir que maintenant la transition des vitesses se place entre 20 et 2 Hz. La courbe sigmoïdale proposée par Knop *et al.* présente donc une transition plus nette à faible pression. Cette transition est décalée vers des temps de cycle plus élevés, ce qui est cohérent avec une concentration plus faible. Ces observations indiquent que sous haute pression d'hydrogène l'influence du temps d'exposition est plus importante, étant donné que la transition des vitesses de propagation se fait dans un intervalle de temps de cycle plus long. Par contre, sous faible pression d'hydrogène, la transition des vitesses se fait à des valeurs de  $\Delta K$  plus élevées, et donc la contrainte hydrostatique devient un paramètre plus importante par rapport au temps d'exposition (et ceci explique le fait que la transition se fait dans un intervalle de temps de cycle plus étroit).

Dans le futur, un essai à 0.35 MPa peut être envisagé afin de vérifier quelle est l'influence d'une pression d'hydrogène encore plus faible (plus proche des conditions de Knop *et al.* [61]). Les essais pourront être menés à des valeurs de  $\Delta K$  plus élevées et à des faibles fréquences de chargement, pour voir si les vitesses présentent encore une transition, et en particulier observer l'évolution des surfaces de rupture. Ceci permettra de mieux comprendre et expliquer les mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène gazeux.

### 3.4 Bilan sur les effets de l'hydrogène sur les mécanismes d'endommagement

L'exploitation des résultats de la campagne expérimentale a montré l'évolution des vitesses de propagation d'une fissure de fatigue et des modes de rupture dans l'hydrogène pour le fer Armco, de microstructure ferritique. Cette évolution dépend de nombreux facteurs qui agissent conjointement et simultanément. Les paramètres clé dans le changement des mécanismes de fissuration sont la pression d'hydrogène (analysée entre 3.5 et 35 MPa), la fréquence de sollicitation cyclique (entre 0.2 et 20 Hz) et le niveau de sollicitation, représenté par la valeur de  $\Delta K$  (dans l'intervalle 8-25 MPa x m<sup>1/2</sup>).

Les facettes de rupture intergranulaire que l'on observe en présence d'hydrogène à faible  $\Delta K$  suggèrent une propagation à caractère fragile. Cependant, dans cet intervalle de  $\Delta K$ , les vitesses de propagation sont inchangées par rapport à l'air. En outre, en observant de plus près les facettes intergranulaires, nous avons montré une intense activité plastique sur les joints de grains, avec des marquages réguliers. Dans la littérature, rares sont les auteurs qui rapportent des observations similaires. Martin *et al.* [90] et Robertson *et al.* [88] ont analysé le rôle de la plasticité induite par la présence de l'hydrogène sur la fragilisation du nickel. Ils ont montré, sur des images à fort grossissement sur des facettes intergranulaires, des traces de glissement. Ils ont expliqué la fragilisation avec le mécanisme HELP. Les résultats montrent que la plasticité joue un rôle important, mais pas seulement à proximité des joints de grains. Le processus de déformation est nécessaire pour atteindre une concentration suffisante d'hydrogène au joint de grain, ce qui favorise la décohésion. D'une manière similaire, les causes d'une telle propagation peuvent être expliquées avec le mécanisme AIDE, proposé par Lynch [60], qui suppose que l'hydrogène adsorbé en surface diminue localement l'énergie de cohésion et facilite la nucléation et l'émission de dislocations depuis la surface. Par contre la propagation entraîne une forte déformation plastique localisée, à cause de l'hydrogène qui facilite l'émission des dislocations.

Les deux théories sont différentes, dans le sens où la première (HELP) se base sur une plasticité qui favorise le transport de l'hydrogène, et donc la décohésion ; la deuxième (AIDE) suppose une activité plastique comme conséquence de la présence de l'hydrogène (nucléation et émission de dislocations) à partir de la pointe de la fissure.

Le pourcentage de facettes intergranulaires augmente avec la pression d'hydrogène. L'effet de la fréquence n'est pas évident, peut-être à cause d'un avancement lent de la fissure, qui permet à l'hydrogène de diffuser suffisamment dans le matériau pour créer les conditions pour ce type de propagation. On atteint alors une « sursaturation » de la quantité d'hydrogène en pointe de fissure à cause des faibles vitesses de propagation. La propagation intergranulaire est présente seulement jusqu'à une certaine valeur de  $\Delta K$ , toujours avant la transition des vitesses, là où les vitesses sont comparables à celles observées sous air.

L'influence néfaste de l'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissures nécessite d'atteindre des valeurs élevées de  $\Delta K$ . Une contrainte hydrostatique positive permet au réseau atomique de laisser rentrer plus facilement l'hydrogène. Ainsi, pour une pression suffisante, on peut observer une augmentation des vitesses, qui dépend aussi de la fréquence de sollicitation. La relation entre vitesses de propagation et fréquence de sollicitation a une allure sigmoïdale, comme montré dans la Figure 3 - 31. La vitesse de propagation peut être limitée au-dessous d'une certaine fréquence (dans ce cas 2 Hz), parce qu'une quantité d'hydrogène « critique » pénètre en pointe de fissure, et au-delà de cette quantité les vitesses de propagation et les modes de rupture ne changent pas. En augmentant la fréquence de chargement cyclique, par contre, les vitesses de propagation baissent jusqu'à, théoriquement, retomber sur les résultats à l'air. Les modes de rupture sont légèrement différents (peut-être encore plus à fréquence plus élevée), parce que la fissure avance si vite que la diffusion réticulaire de l'hydrogène n'a pas le temps de se faire. Dans cette partie les surfaces de rupture présentent des facettes de clivage, avec un aspect plus fragile et des marquages très nets, souvent des stries. En particulier on observe des stries après la transition des vitesses de propagation. Par contre on n'observe que des marquages plastiques dans la propagation transgranulaire pendant la transition. Il est probable que, dans ces conditions, l'hydrogène qui diffuse dans le matériau réduit l'énergie de cohésion des plans cristallins à l'intérieur du grain. Un mécanisme de type HEDE serait alors prédominant sur les effets de plasticité en pointe de fissure.

Les résultats montrent donc une influence complexe de l'hydrogène sur la propagation de fissures. La distance de pénétration de l'hydrogène a certainement un fort impact sur la modification des modes de rupture, et, par conséquent, sur les vitesses de propagation. Hélas, mesurer la taille de cette région est difficile. Un modèle numérique qui calcule la diffusion de l'hydrogène (suivant le modèle de Krom *et al.* [55]), en tenant compte de l'effet de la contrainte hydrostatique (équation 1.6), permette d'estimer la zone affectée par l'hydrogène en pointe de fissure. Cette mesure dépend de la concentration d'hydrogène en pointe de fissure (calculée avec la loi de Sievert), de la fréquence de chargement (ou du temps de diffusion), de la contrainte hydrostatique (c'est-à-dire la valeur de  $\Delta K$ ) et du coefficient de diffusion. Ce modèle numérique sera présenté dans la troisième partie de ce manuscrit.

Pour mieux comprendre et expliquer les résultats de fissuration, et pour développer le modèle numérique afin de prédire au mieux la diffusion en pointe de fissure, il est nécessaire de rechercher plus d'informations. La connaissance de la valeur du coefficient de diffusion pour l'état non-déformé ainsi que pour des différents états de déformation, tout comme la variation des populations d'hydrogène interstitiel et piégé au cours de la déformation, permet de donner une interprétation plus précise de la modification des mécanismes de propagation de fissures sous hydrogène. Les observations MET des différents états déformés (permettant d'évaluer la taille des cellules et la densité de dislocations) permettent de décrire plus finement l'interaction entre l'hydrogène et les défauts microstructuraux. Cette étude sur l'interaction entre hydrogène et plasticité cyclique, afin de trouver des paramètres physiques pertinents qui gouvernent les modes de rupture, sera l'objet du prochain chapitre.

## Chapitre 4

### Analyse de l'interaction hydrogène-plasticité

Cette partie présente l'étude de l'interaction hydrogène – défauts cristallins développés lors d'une sollicitation cyclique dans le fer Armco. Le but est d'avoir des informations quantitatives sur les différents processus impliqués dans la perte de résistance à la fissuration sous hydrogène.

Des essais de fatigue cyclique ont été menés à différentes amplitudes de déformation plastique imposée sur des éprouvettes oligocycliques en fer Armco; les échantillons ainsi déformés ont été caractérisés au MET. Par la suite la solubilité apparente de l'hydrogène dans ces états déformés a été étudiée, après un chargement électrochimique en milieu acide, par la technique de désorption électrochimique (TDS). Ces dernières mesures peuvent être corrélées avec les observations MET de lames minces permettant d'évaluer la taille des cellules et la densité de dislocations afin de décrire plus finement l'interaction entre l'hydrogène et ces défauts.

#### 4.1 Comportement cyclique

Ce paragraphe présente la procédure et les résultats des essais de fatigue oligocyclique en contrôle de déformation totale ou plastique, et les essais de sollicitation cyclique en contrainte imposée. Ces essais permettront de réaliser différentes structures de déformation (différentes valeurs d'amplitude de déformation plastique imposée et de déformation plastique cumulée), sur lesquelles nous réaliserons les analyses successives.

##### 4.1.1 Procédure expérimentale

Des éprouvettes de fatigue oligocyclique et de fissuration ont été réalisées à partir de la plaque en fer Armco après le traitement thermique de recuit (paragraphe 2.1.2). Afin d'éviter les hétérogénéités microstructurales, les éprouvettes ont été prélevées dans le cœur des plaques. L'axe de symétrie des éprouvettes de fatigue oligocyclique a été choisi dans la direction longitudinale, c'est-à-dire la direction de laminage. La géométrie des éprouvettes est identique à celle des éprouvettes de traction (paragraphe 2.2.2). La longueur utile est égale à 20 mm, tandis que le diamètre est 8 mm. Ces dimensions se justifient également afin d'assurer les prélèvements des échantillons nécessaires aux différentes analyses, à savoir : des demi-disques pour les mesures de dosage de l'hydrogène (diamètre 8mm et hauteur 3 mm, avec masse  $M \approx 0.5$  g), des lames minces pour les observations au MET (diamètre  $d = 3$  mm) et des disques pour la perméation électrochimique (diamètre 8 mm et épaisseur 1 mm).

L'usinage et la préparation des éprouvettes sont également identiques à ceux des essais de traction, et sont décrits dans le paragraphe 2.2.2. Les essais de traction sont réalisés sur une machine de fatigue électromécanique de type INSTRON 1362B (présentée dans le paragraphe 2.2.1), à l'Institute Pprime à Poitiers. Les essais sont conduits à température ambiante et sous air.

Les déformations sont mesurées par un capteur de type 406, de base 10 mm et amplitude de débattement  $\pm 1$  mm, qui est placé sur la partie utile des éprouvettes.

Le logiciel d'essai LCF® permet de piloter les essais de fatigue sur la machine Instron 1362 avec une commande en déformation totale, en déformation plastique ou en contrainte. L'essai continue jusqu'à atteindre un nombre prédéterminé de cycles, ou un critère d'arrêt (choisi par l'opérateur sur les valeurs de position, déformation ou charge) ou jusqu'à la rupture (selon le premier critère atteint). Grâce à l'acquisition continue il est possible d'analyser les données et de générer différents graphes pour analyse, par exemple la boucle d'hystérésis contrainte-déformation, au cours de n'importe quel cycle. Ceci nous permet une régulation aisée des paramètres PID, qui sont choisis en phase de test pour chaque différente amplitude de déformation ou contrainte imposée.

La méthode d'essai du logiciel LCF suit les exigences de la norme ASTM E606 (Standard Test Method for Strain-Controlled Fatigue Testing) [141].

### 4.1.2 Choix des paramètres des essais de fatigue cyclique en déformation imposée

Des essais de fatigue oligocyclique en contrôle de déformation plastique ont été réalisés afin d'étudier l'influence des structures de déformation sur la diffusion et le piégeage de l'hydrogène. L'idée principale est d'élaborer au sein des échantillons des structures de déformations à iso-valeur de déformation plastique cumulée mais avec différentes amplitudes de déformation plastique imposée ( $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$  et  $0.4\%$ ), ou bien à différentes valeurs de déformation plastique cumulée ( $\varepsilon_{p,cum} = 8$  et  $32$ ) pour une même amplitude imposée. Des échantillons pour le dosage en hydrogène, des lames minces pour observations au microscope électronique en transmission et des disques pour perméation électrochimique seront ensuite prélevés dans la partie utile de ces éprouvettes pour l'analyse.

Les essais de fatigue oligocyclique ont été réalisés à une vitesse de déformation de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$  pour un rapport de déformation  $R_{ep} = -1$  (déformation moyenne nulle). Si le comportement du matériau en termes de contraintes peut varier en fonction de la vitesse de déformation [142], celle-ci n'a pas d'influence sur les structures de déformation plastique obtenues à égale déformation plastique cumulée. En tout cas, Harding [143] a montré que, sur le fer pur et dans l'intervalle de vitesses de déformation compris entre  $10^{-2}$  et  $10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , il n'y a pas d'influence de la vitesse de déformation sur la relation de Hall-Petch, et donc sur la contrainte atteinte pour une certaine déformation, mais seulement sur la limite d'élasticité. Baylon *et al.* [118] ont confirmé ce résultat dans l'intervalle de vitesses de déformation compris entre  $10^{-3}$  et  $10^{-5} \text{ s}^{-1}$ .

La première étape de l'essai consiste à calculer le module de Young initial, E. Cette opération permet également de vérifier que le montage est correct et que l'extensomètre ne glisse pas pendant la mesure. Le calcul de E est effectué avec un cycle de chargement jusqu'à une contrainte de 100 MPa, bien éloigné de la limite d'élasticité.

Un premier essai a été réalisé avec un pilotage en déformation totale, avec une amplitude de 0.56%. Cette valeur a été choisie pour avoir une amplitude de déformation plastique initiale d'environ 0.4%. Le signal de commande est triangulaire avec une vitesse de déformation constante. La Figure 4 - 1 montre l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation totale (c'est-à-dire les boucles d'hystérésis).

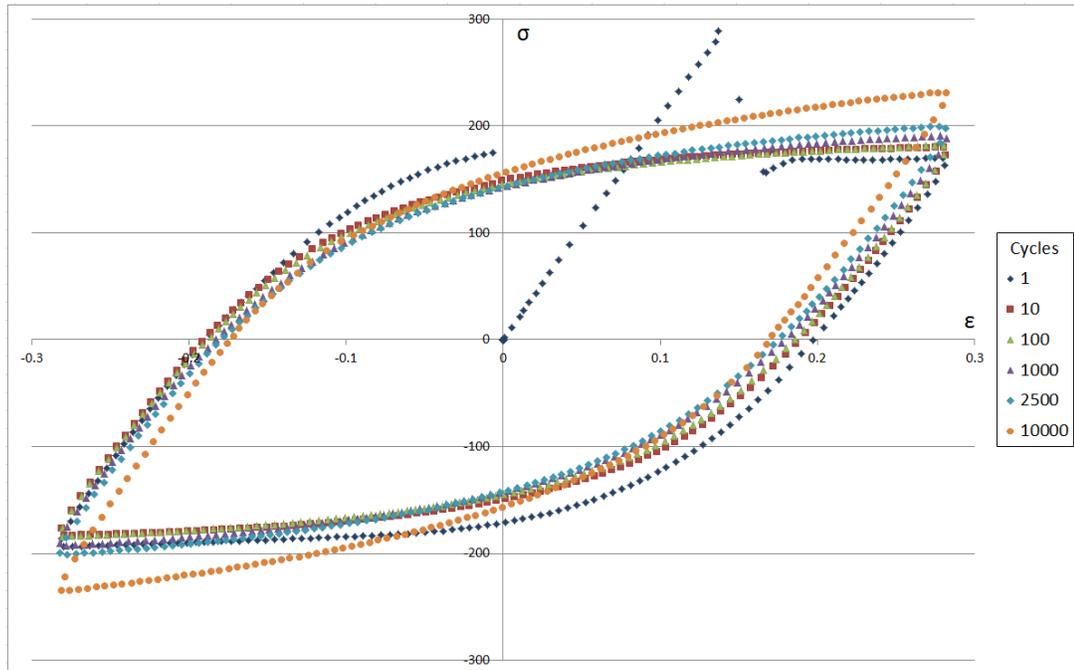


Figure 4 - 1 : Boucles d'hystérésis de l'essai de fatigue plastique en pilotage de déformation totale ( $\Delta\epsilon_{tot} = 0.56\%$ )

On peut remarquer une instabilité au premier cycle due à la présence du pic de contrainte à la fin de la déformation élastique. Ce phénomène a été déjà observé lors des essais de traction (paragraphe 2.2.4). L'intensité de ce pic dépend de la vitesse de déformation, mais il n'a pas d'influence sur la déformation plastique cumulée, étant donné qu'il reste confiné au premier cycle.

Lors des essais de fatigue plastique à déformation imposée de traction-compression on peut observer l'effet Bauschinger, c'est-à-dire une variation de la limite d'élasticité en compression après un chargement initial en traction et vice-versa. Le deuxième effet est un adoucissement ou un durcissement cyclique du matériau, c'est-à-dire une diminution ou une augmentation de la contrainte maximale avec le nombre de cycles. Il peut s'agir d'une phase transitoire, avec une stabilisation de la contrainte après un certain nombre de cycles, ou bien on peut observer une variation progressive de la contrainte maximale jusqu'à rupture. Ces deux effets traduisent une évolution de la surface de charge : dans le premier cas (effet Bauschinger) il s'agit d'un comportement cinématique, c'est-à-dire que la surface se déplace mais la taille reste constante (égale à  $2\sigma_0$ ) ; dans le deuxième cas le comportement est isotrope, avec une variation de la taille de la surface de charge.

Le comportement observé pour ce premier essai est durcissant (Figure 4 - 1). En effet la contrainte maximale augmente progressivement jusqu'à la rupture de l'éprouvette. En plus on observe une diminution de la déformation plastique pendant le cycle au fur et à mesure que les cycles augmentent (du 0.4% initial jusqu'à environ le 0.3% après 10000 cycles), donc une augmentation de la partie élastique. Le comportement général du matériau sera alors représenté par une superposition d'écrouissage isotrope et cinématique.

Cette évolution de la contrainte (et aussi de la déformation plastique) au cours du cyclage empêche de définir a priori un critère qui permet de stopper l'essai pour une valeur de déformation plastique cumulée bien définie. Pour ce faire, le pilotage en déformation plastique a été testé. La Figure 4 - 2 présente les boucles d'hystérésis des essais réalisés avec pilotage en déformation plastique avec amplitude de déformation  $\Delta\epsilon_p = 0.2\%$ ,  $0.4\%$  et  $0.8\%$ .

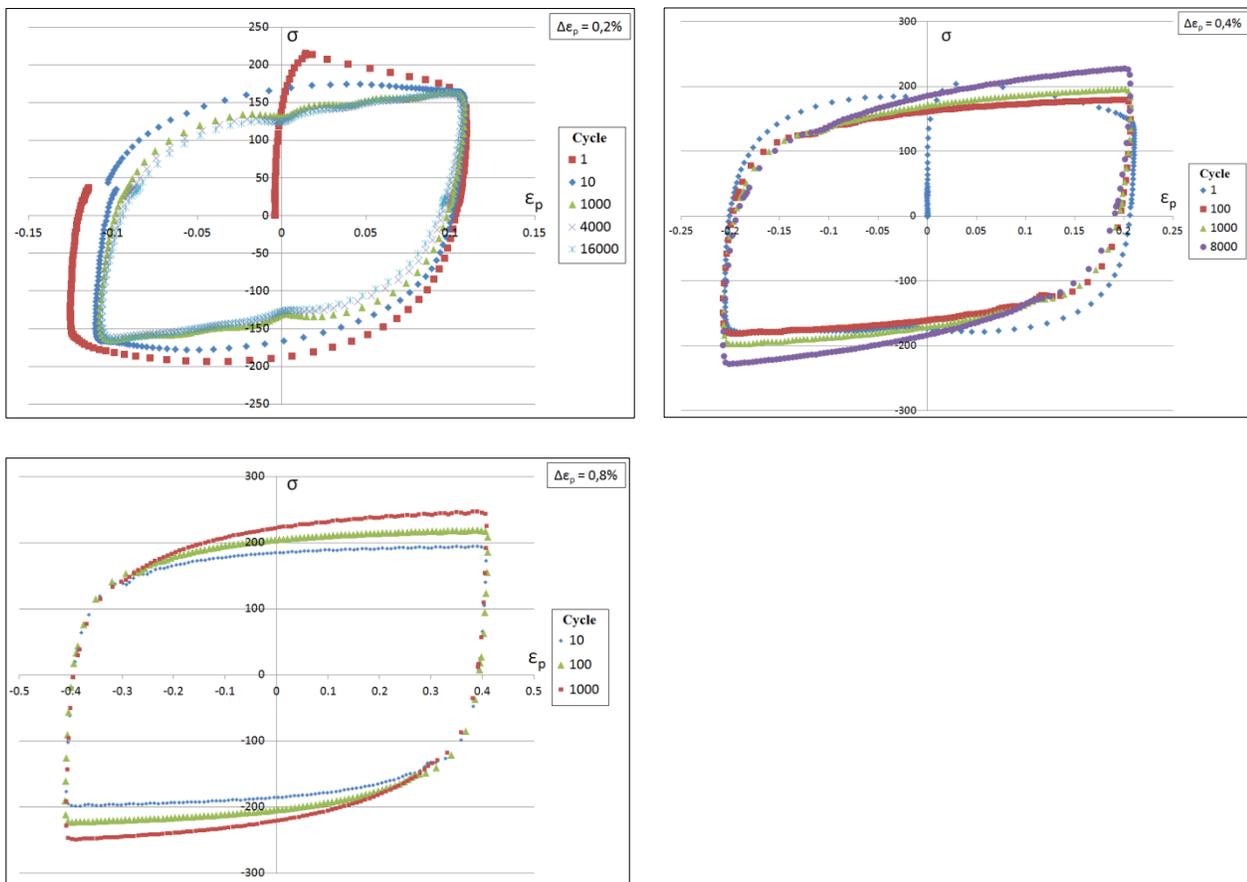


Figure 4 - 2 : Boucles d'hystérésis des essais de fatigue oligocyclique en pilotage de déformation plastique :  $\Delta\epsilon_p = 0.2\%$ ,  $0.4\%$  et  $0.8\%$

Après réglage des paramètres de commande de la machine, la forme des boucles d'hystérésis est plutôt « propre ». Nous avons choisi de piloter les essais en déformation plastique, ce qui nous permet d'imposer la déformation plastique cumulée de façon précise.

Des essais à rupture nous permettent de quantifier la déformation plastique cumulée que nous pouvons atteindre en fonction de l'amplitude de déformation. Ceci nous permettra de pouvoir choisir les structures de déformation à réaliser pour les analyses successives.

### 4.1.3 Sollicitation cyclique en déformation plastique imposée

La Figure 4 - 3 montre les courbes de consolidation cyclique dans le cas d'amplitude de déformation plastique imposée  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$ ,  $0.4\%$  et  $0.8\%$ . La figure présente la contrainte maximale atteinte pendant chaque cycle en fonction de la déformation plastique cumulée. On observe une grande différence sur la déformation plastique cumulée à rupture entre les différentes amplitudes de déformation imposée.

Le type de réponse dépend du matériau et de l'amplitude de déformation plastique imposée. Pour  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$ , le comportement du matériau est initialement adoucissant. La valeur de contrainte maximale diminue avec le cyclage, pour se stabiliser après environ 5000 cycles, ce qui correspond à une déformation plastique cumulée  $\varepsilon_{p,cum} = 10$ . La cinématique dans ce cas reste constante tout au long de l'essai. En augmentant l'amplitude de déformation imposée, nous observons le passage à un mécanisme durcissant, qui ne présente pas de stabilisation. En fait, sur la Figure 4 - 2 on observe qualitativement, pour  $\Delta\varepsilon_p = 0.4\%$  et  $0.8\%$ , une augmentation de la cinématique, qui cause une augmentation de la contrainte maximale jusqu'à rupture.

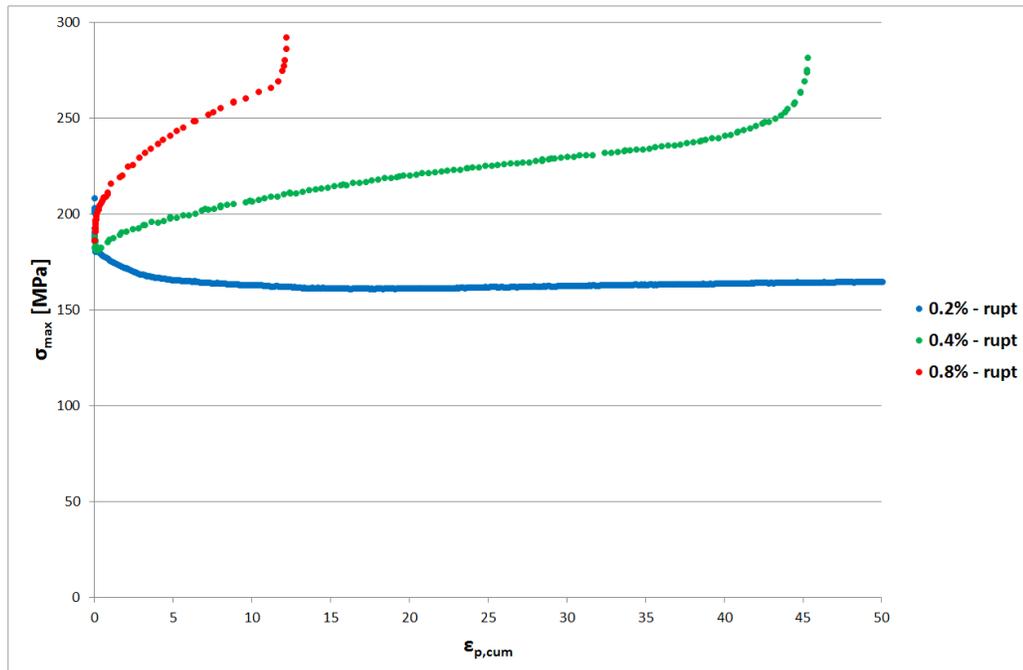


Figure 4 - 3 : Courbes de consolidation cyclique pour les amplitudes de déformation plastique imposée  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$ ,  $0.4\%$  et  $0.8\%$  (essais jusqu'à rupture)

Ces différences de comportement observées pour différentes valeurs de  $\Delta\varepsilon_p$  ne sont pas étonnantes. Nous avons en effet déjà trouvé dans la littérature des comportements similaires. Roven et Nes [144] ont réalisé des essais de déformation cyclique sur un acier ferritique

faiblement allié. Ils ont observé la réponse cyclique du matériau pour différentes amplitudes de déformation plastique imposée. Ils montrent un adoucissement aux faibles amplitudes de déformation, avec saturation de la contrainte après un certain nombre de cycles, et un durcissement aux amplitudes de déformations les plus élevées, ce qui ne porte pas à saturation de la contrainte (qui augmente jusqu'à rupture). D'autres auteurs ont réalisé des observations similaires, par exemple Chai et Laird sur un acier à faible teneur de carbone [145]. Mughrabi *et al.* ont observé le même comportement sur un acier avec microstructure cubique centrée, et le comportement opposé sur du cuivre polycristallin [146,147].

Cinq états de déformation ont été choisis pour cette étude, correspondant à trois niveaux d'amplitude de déformation plastique et deux valeurs de déformation plastique cumulée :

- 1)  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  ;
- 2)  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum} = 32$  ;
- 3)  $\Delta\varepsilon_p = 0.4\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  ;
- 4)  $\Delta\varepsilon_p = 0.4\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum} = 32$  ;
- 5)  $\Delta\varepsilon_p = 0.8\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum} = 8$ .

L'essai à amplitude de déformation plastique  $\Delta\varepsilon_p = 0.8\%$  a conduit à la rupture de l'éprouvette pour  $\varepsilon_{p,cum} \approx 12$ . En conséquence, seul le cas  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  a été retenu pour des analyses successives. Les conditions de déformation choisies sont indiquées sur la Figure 4 - 4.

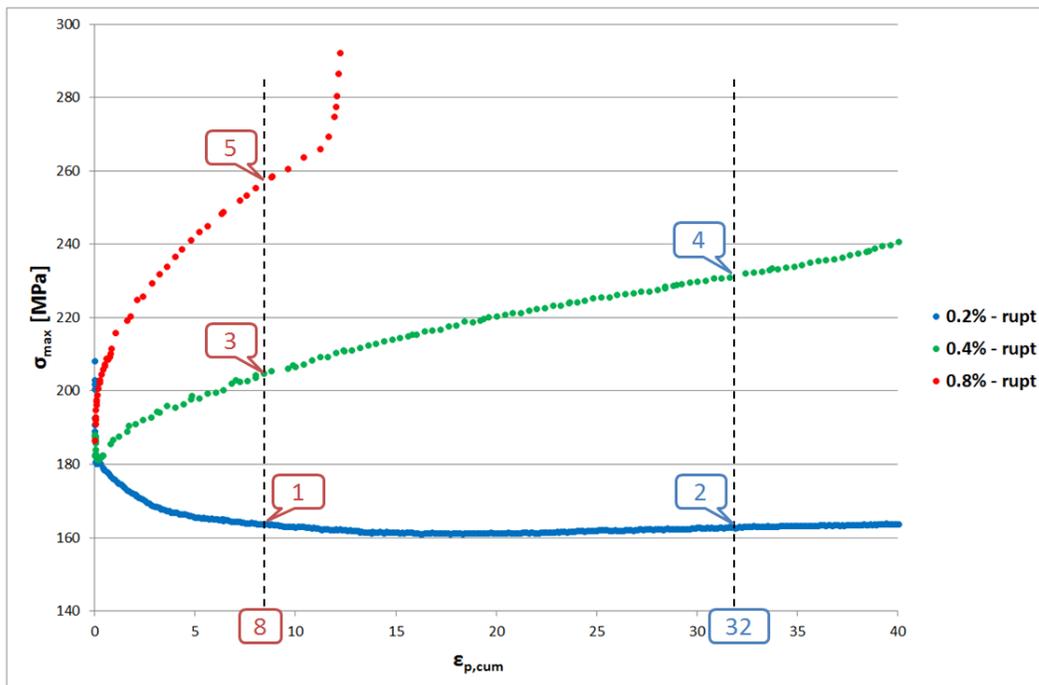


Figure 4 - 4 : Les cinq états déformés choisis sont représentés sur les courbes de consolidation

Les analyses seront conduites en comparaison aux données collectées pour l'état non-déformé, en utilisant des échantillons prélevés au sein d'une éprouvette n'ayant subi aucune déformation après le traitement thermique et le tournage.

#### 4.1.4 Sollicitation cyclique en contrainte imposée (effet rochet)

Nous allons maintenant présenter les résultats concernant le comportement du fer Armco soumis à une sollicitation cyclique non symétrique à contrainte imposée, réalisé à température ambiante. La motivation de cette partie du travail est d'analyser l'évolution de la déformation cyclique du matériau, et d'étudier la relation entre celle-ci et la distribution des dislocations dans la microstructure. Le suivi de l'évolution de la contrainte cyclique (contrainte interne, effective et thermique), corrélée à des observations MET sur la densité des dislocations, peut permettre de comprendre le comportement du matériau (adoucissant et/ou durcissant) et de remonter à la loi de comportement.

Le même essai sous hydrogène est envisagé, afin d'analyser l'évolution des boucles d'hystérésis et des contraintes cycliques du matériau saturé en hydrogène. La comparaison des clichés MET permettra d'analyser l'effet de la présence d'hydrogène pendant le chargement sur la déformation plastique (par exemple la formation/modification des dipôles).

L'effet de l'application d'une sollicitation cyclique en contrainte imposée est l'apparition d'une déformation plastique progressive dans la direction axiale de l'éprouvette. En d'autres termes, à chaque cycle un incrément de déformation plastique survient dans la direction axiale. Ce phénomène, appelé effet rochet, a été identifié par Bairstow *et al.* [148] en 1911. Des nombreuses études expérimentales ont été menées depuis afin de caractériser ce phénomène [149–152].

Les essais ont été conduits sur la même machine et avec les mêmes éprouvettes que les essais en déformation imposée. Le signal de sollicitation est triangulaire, avec un rapport de charge  $R_\sigma = 0$ . L'amplitude de contrainte imposée est 220 MPa. Deux vitesses de pilotage différentes ont été testées : 1 et 100 MPa/s. Une traction préalable jusqu'à  $\epsilon_p = 0.2\%$  en pilotage de déformation à une vitesse de 0.01%/s a été réalisée pour toutes les éprouvettes, afin de dépasser le pic de contrainte que nous avons observé à la fin de la partie élastique (paragraphe 2.2.4 et Figure 2-16). Cela permet d'éviter l'influence de ce pic sur la déformation dans les premiers cycles.

La Figure 4 - 5a montre l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation totale cumulée pour l'essai réalisé à 100 MPa/s. On observe une forte cinématique pour ce matériau. L'évolution de la déformation est caractérisée par un transitoire initial, dans lequel l'incrément de déformation par cycle est assez fort. Après quelque cycle, cet incrément se stabilise à une valeur plus faible que celle de départ. Cet incrément diminue avec le cyclage, allant jusqu'à zéro après un certain nombre de cycles (stabilisation pour environ 500 cycles).

L'essai rochet réalisé à vitesse de contrainte 1 MPa/s montre une déformation beaucoup plus importante au premier cycle (Figure 4 - 5b), qui se stabilise dans 5-6 cycles (la Figure 4 - 5c montre les cycles 2-8).

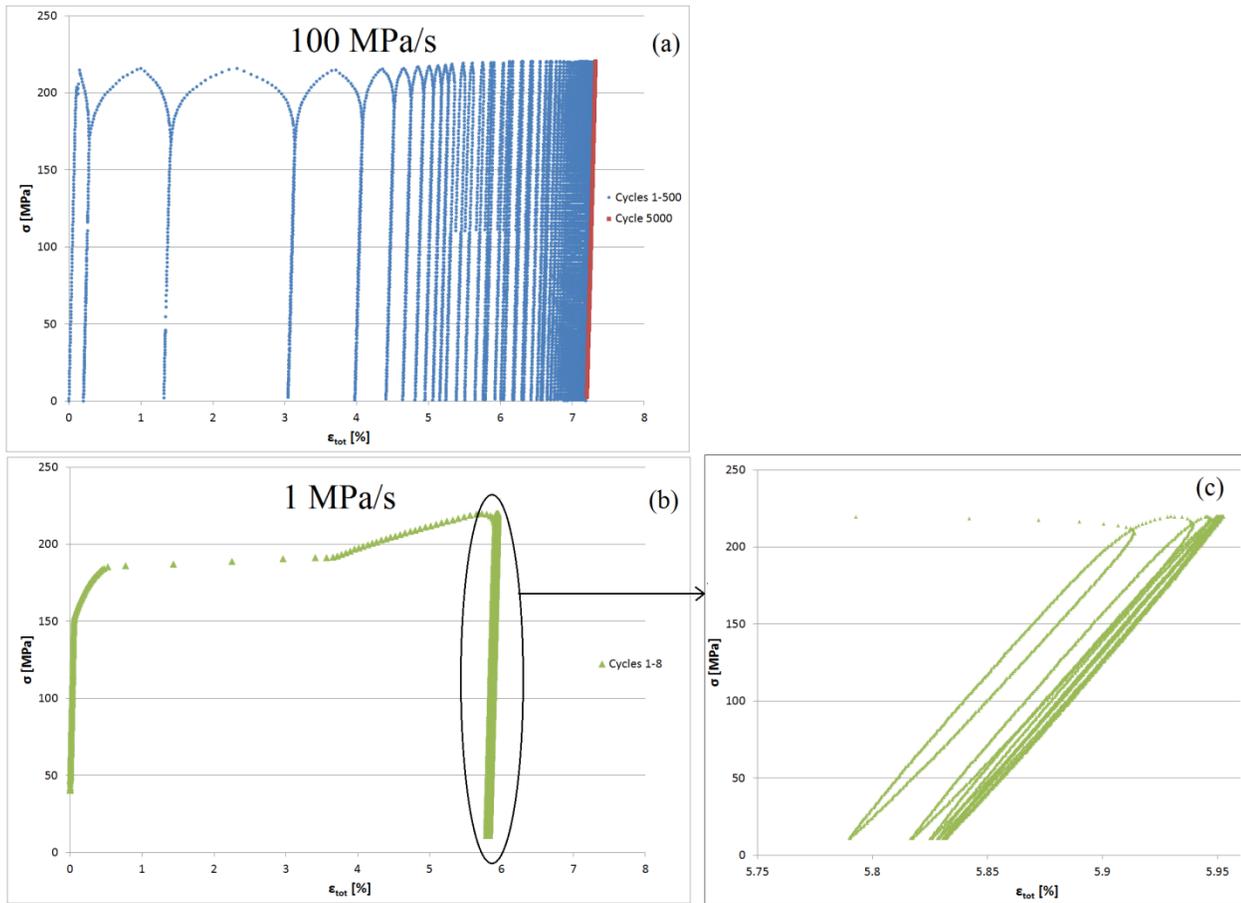


Figure 4 - 5 : Évolution de la contrainte en fonction de la déformation totale pour l'essai en contrainte imposée réalisé à la vitesse de 100 MPa/s (a), et pour l'essai réalisé à la vitesse de 1 MPa/s : courbe complète (b) et grossissement sur les cycles 2-8 (c)

L'amplitude de déformation pendant les premiers cycles est très élevée, en liaison avec les hauts niveaux de contrainte appliqués. En effet, sur les courbes de traction nous avons observé un palier de contrainte après la déformation élastique initiale, jusqu'à une déformation totale d'environ 5%. Ceci nous permet d'expliquer les différences observées dans les premiers cycles entre les deux essais, c'est-à-dire que à faible vitesse de chargement de l'éprouvette a le temps de se déformer jusqu'à la condition plus stable. A haute vitesse, par contre, l'éprouvette n'a pas le temps de se déformer beaucoup avant que la contrainte recommence à diminuer. Ce point nous permet aussi de comprendre l'augmentation de la déformation observée pendant la phase de décharge dans les premiers cycles de l'essai à 100 MPa/s. En fait, dans ce cas, à cause de la vitesse élevée du pilotage en contrainte, le matériau n'as pas le temps d'atteindre une condition stable de déformation, et donc, pendant la décharge, le matériau continue à se déformer malgré la diminution de la contrainte macroscopique. Cette situation est similaire à un effet visqueux dû à la vitesse de pilotage et à la réponse différée de la microstructure pour accommoder une contrainte élevée.

Afin d'étudier la nature physique du comportement mécanique du matériau, la contrainte d'écoulement est divisé en deux composantes, en fonction de la forme des cycles d'hystérésis, à savoir  $X$ , qui représente la contrainte interne, et  $\Sigma_{ef}$  la contrainte effective. Cette répartition a été proposée par Cottrell et Dexter [153] pour le chargement cyclique. Dickson *et al.* [154] ont proposé de prendre en compte la partie thermique de la contrainte  $\Sigma^*$ . On peut définir  $\Sigma_\mu$  comme la contrainte athermique, égale à la différence entre la contrainte effective et la contrainte thermique. Feaugas a étudié les origines de ce phénomène sur un acier austénitique de type AISI 316L [155]. La Figure 4 - 6 montre la définition des contraintes décrites.

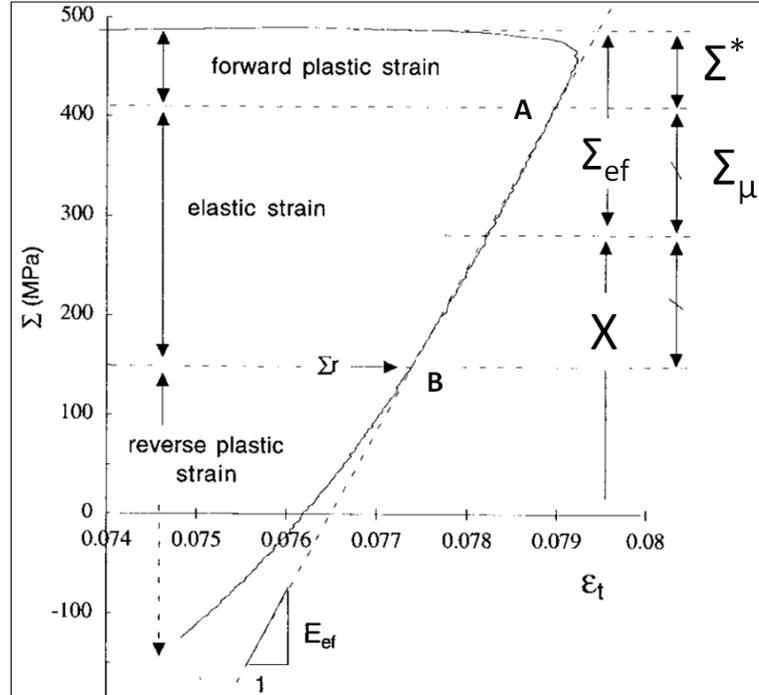


Figure 4 - 6 : Définition de la contrainte interne  $X$ , de la contrainte effective  $\Sigma_{ef}$ , de la contrainte athermique  $\Sigma_\mu$  et de la contrainte thermique  $\Sigma^*$  [155]

Pour chaque cycle il faut identifier les bornes de la partie linéaire, en traction et en compression. Une fois extraites, les composantes de la contrainte sont calculées par les équations suivantes :

$$X = \frac{\Sigma_A + \Sigma_B}{2} \quad \Sigma^* = \Sigma_{max} - \Sigma_A \quad \Sigma_\mu = \frac{\Sigma_A - \Sigma_B}{2} \quad \Sigma_{ef} = \Sigma^* + \Sigma_\mu$$

Nous avons mesuré l'évolution de ces composantes avec le cyclage.

La partie thermiquement activée n'évolue pas avec l'incrément de déformation plastique, ce qui n'est pas surprenant car nous travaillons à vitesse de déformation et à température constantes. La Figure 4 - 7 présente l'évolution de la contrainte interne  $X$  et de la contrainte athermique  $\Sigma_\mu$  pour l'essai mené à une vitesse de 100 MPa/s. A cause du bruit sur la mesure nous avons rejeté les valeurs des deux premiers cycles.

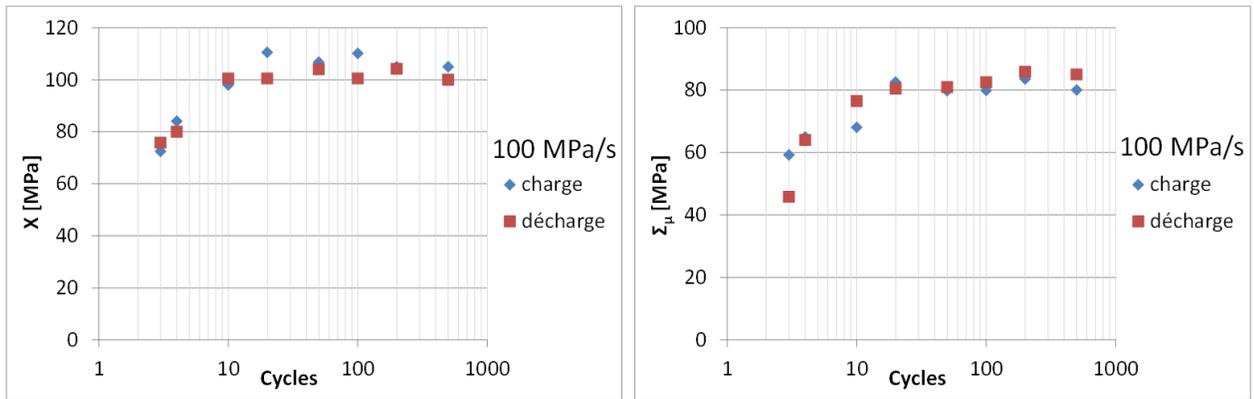


Figure 4 - 7 : Evolution de la contrainte interne  $X$  (sur la gauche) et de la contrainte athermique  $\Sigma_{\mu}$  (sur la droite) pour l'essai mené à une vitesse de 100 MPa/s

Nous observons une augmentation des contraintes interne et athermique dans les premiers cycles, jusqu'à une stabilisation pour quelque dizaine de cycles. La Figure 4 - 8 montre l'évolution de la contrainte interne  $X$  et de la contrainte athermique  $\Sigma_{\mu}$  pour l'essai mené à une vitesse de 1 MPa/s. Dans ce cas on observe une stabilisation des contraintes à partir du premier cycle, ce qui confirme les considérations précédentes sur l'obtention d'une structure de déformation stable au premier cycle de l'essai à 1 MPa/s.

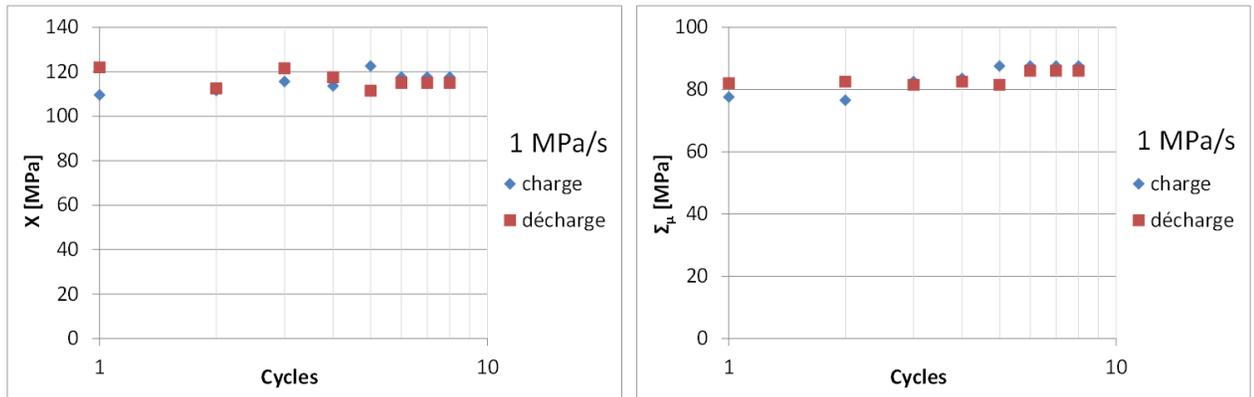


Figure 4 - 8 : Evolution de la contrainte interne  $X$  (sur la gauche) et de la contrainte athermique  $\Sigma_{\mu}$  (sur la droite) pour l'essai mené à une vitesse de 1 MPa/s

Pour mieux comprendre les comportements observés, des observations MET des différentes structures de dislocations sont nécessaires, afin d'étudier l'évolution des différentes structures de dislocations au cours du cyclage. La réalisation d'un essai sous haute pression d'hydrogène gazeux et son analyse permettront par ailleurs de comparer les états de déformation. L'évolution de la taille des dipôles, en particulier, pourrait mettre en évidence un éventuel effet de l'hydrogène sur la plasticité.

## 4.2 Observations MET

Des observations MET sont réalisées sur les cinq états déformés à partir de lames minces coupées dans la partie utile des éprouvettes dans la direction perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette. La Figure 4 - 9 montre le plan de découpe. Les quatre disques seront utilisés pour les essais de TDS et perméation. Les lames minces sont prélevées à partir des deux cylindres de diamètre 3mm.

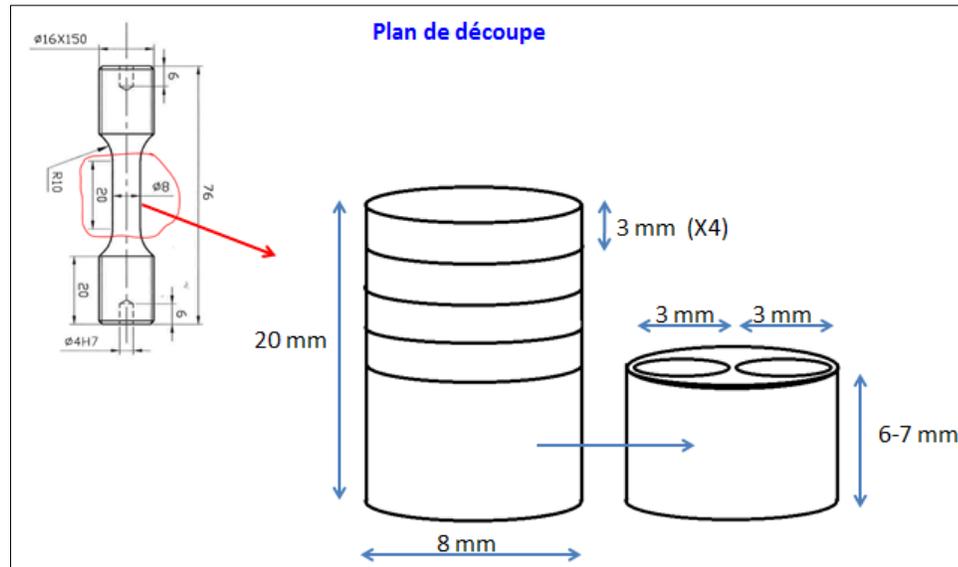


Figure 4 - 9 : Plan de découpe de la partie utile d'une éprouvette cylindrique

La Figure 4 - 10 montre les observations MET de l'état de référence (non-déformé). Nous pouvons observer que le matériau dans l'état initial (après traitement thermique et sans déformation plastique appliquée) présente une structure cellulaire. On peut observer la présence de dislocations isolées et des empilements de dislocations. Ceux-ci, avec l'imposition de la déformation plastique, vont former des cellules de dislocations et des nouveaux murs.

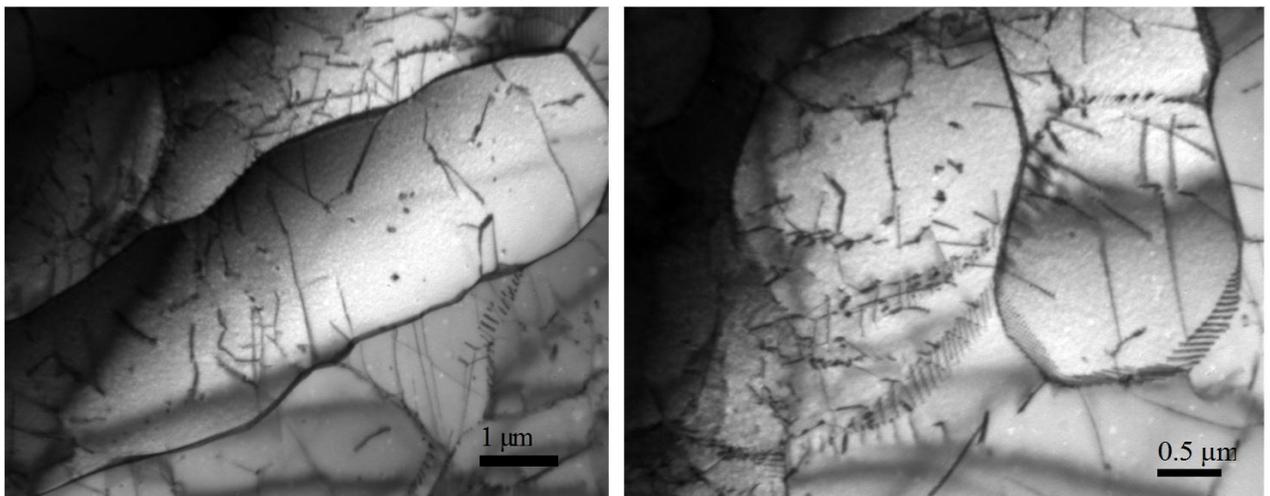


Figure 4 - 10 : Images MET de l'état non déformé : dislocations dispersées et cellules de dislocations

Ces cellules étaient vraisemblablement présentes préalablement au traitement thermique et n'ont donc pas été éliminées. Dans le futur on pourra envisager de modifier le traitement thermique dans le but d'éliminer le plus possible les dislocations isolées à l'intérieur des cellules et avoir de moins en moins des cellules, même si on ne peut pas les éliminer complètement. Ceci peut être réalisé, par exemple, en augmentant le temps de maintien du palier du traitement thermique, ou, légèrement, la température de ce dernier, sans trop faire accroître la taille de grain.

La Figure 4 - 11 présente les cartographies de l'intérieur d'un grain pour les cinq échantillons déformés :  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$  et  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  (a),  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$  et  $\varepsilon_{p,cum} = 32$  (b),  $\Delta\varepsilon_p = 0.4\%$  et  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  (c),  $\Delta\varepsilon_p = 0.4\%$  et  $\varepsilon_{p,cum} = 32$  (d),  $\Delta\varepsilon_p = 0.8\%$  et  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  (e).

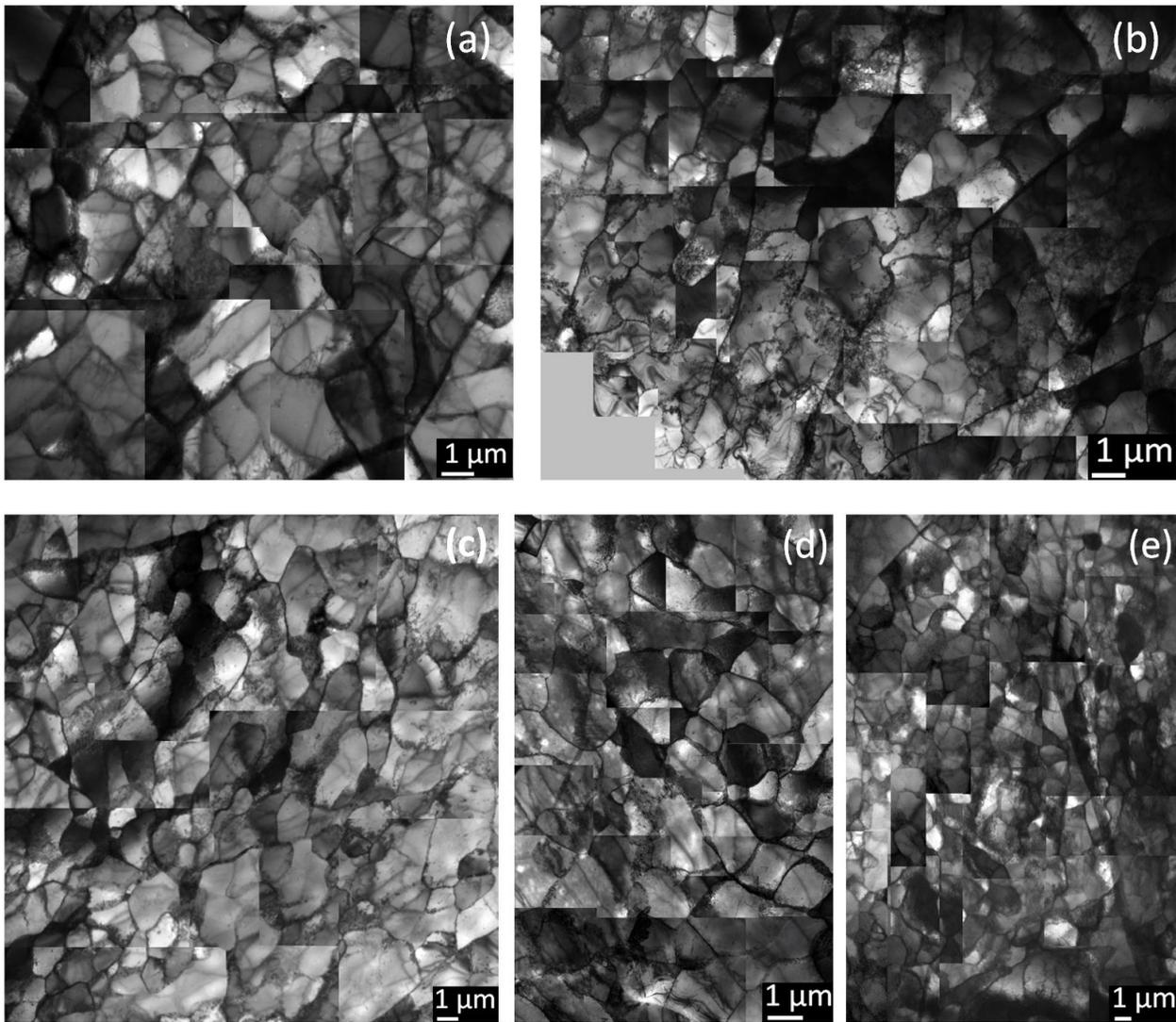


Figure 4 - 11 : Cartographies de l'intérieur d'un grain des cinq échantillons déformés :  $\Delta\varepsilon_p=0.2\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum}=8$  (a),  $\Delta\varepsilon_p=0.2\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum}=32$  (b),  $\Delta\varepsilon_p=0.4\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum}=8$  (c),  $\Delta\varepsilon_p=0.4\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum}=32$  (d),  $\Delta\varepsilon_p=0.8\%$ ,  $\varepsilon_{p,cum}=8$  (e).

Dans tous les cas, nous n'avons observé que des structures cellulaires, ce qui signifie que les structures dipolaires se forment pour des amplitudes de déformation plus faibles. Des observations à plus fort grandissement ont permis le calcul des densités de dislocations, dans les cellules et au sein des murs de dislocations, et la mesure de la taille des cellules. Ces résultats seront par la suite corrélés avec les mesures de teneur en hydrogène afin d'identifier les paramètres qui jouent un rôle important entre la déformation plastique et la diffusion de l'hydrogène.

La Figure 4 - 12 donne un exemple d'une cellule de dislocations dans l'échantillon 4. L'orientation cristallographique a été calculée, au moyen de plusieurs images prises avec des tilts différents, et traitées avec le logiciel CaRIne. L'orientation est reportée à droite de l'image, représentée avec le triangle standard. Le point sur le triangle standard représente la direction de chargement. Dans un cristal sous contrainte, le glissement se produit sur un certain nombre de plans et de directions orientés favorablement. La direction de glissement préférentielle pour une microstructure cubique centrée soumise à une déformation de traction est  $\langle 111 \rangle$  [156,157]. Le facteur de Schmid est utilisé pour calculer la valeur maximale des contraintes sur les possibles plans de glissement  $\{110\}$ . Il existe 12 possibles couplages des plans et des directions. Le facteur de Schmid maximum indique le système de glissement potentiellement opérationnel [158]. Le triangle standard en bas dans la Figure 4 - 12, représente les facteurs de Schmid dans un cristal cubique centré. A noter que l'orientation du triangle est divisée en deux régions avec différente direction de glissement  $\langle 111 \rangle$ .

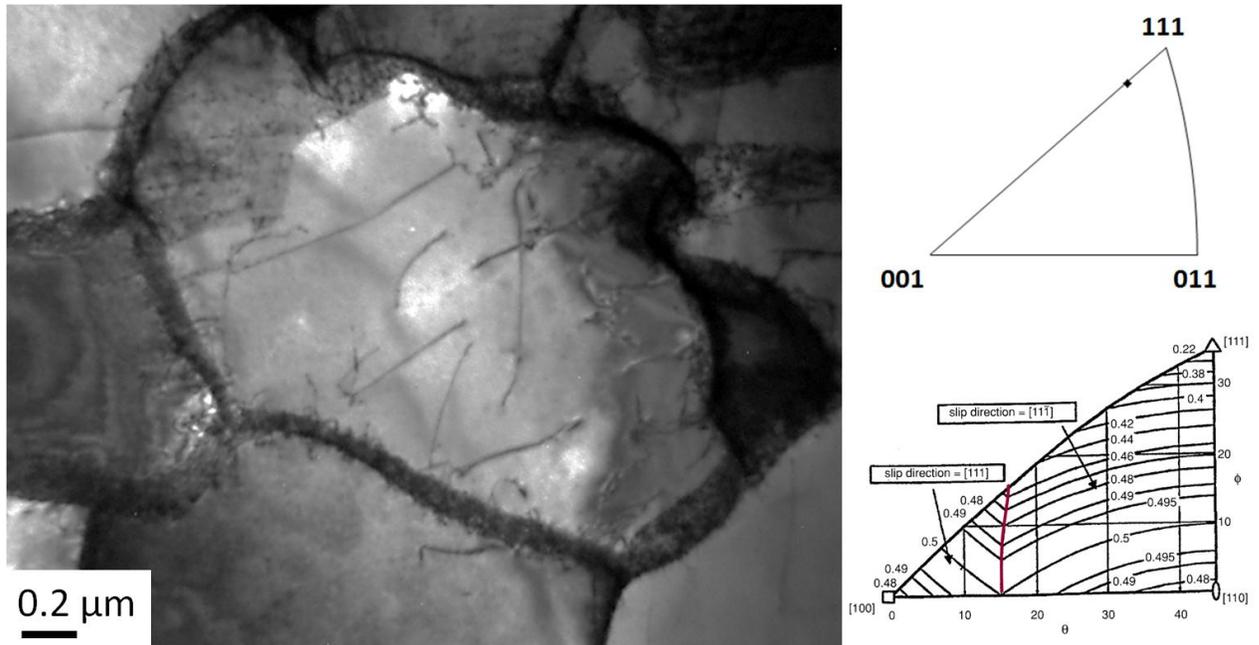


Figure 4 - 12 : Cellule de dislocations dans l'échantillon 4 ( $\Delta\epsilon_p = 0.4\%$ ,  $\epsilon_{p,cum} = 32$ ), et respective orientation de la direction de chargement (triangle standard en haut). En bas, triangle standard qui représente les facteurs de Schmid dans un cristal cubique centré

Le facteur de Schmid peut être calculé comme :

$$S = \cos \theta \cos \Phi \quad (4.1)$$

où  $\theta$  est l'angle entre le centre et les trois pôles et  $\Phi$  est l'angle entre le centre et les quatre vecteurs de Burgers. On peut calculer les différents produits entre les pôles et les vecteurs de Burgers. En regardant la figure, ce produit devrait être proche de 0.38. A l'avenir, il sera très intéressant d'observer la variation du facteur de Schmid sur un échantillon déformé sous hydrogène.

La taille des cellules  $\lambda$  et la densité de dislocations  $\rho$  dans chaque échantillon sont détaillées dans le Tableau 4 - 1.

La densité de dislocation a été calculée avec la méthode des intersections, proposée initialement par Smith et Guttman [159]. Cette méthode consiste à tracer des droites parallèles à l'intérieur du grain et à compter les intersections avec les dislocations (N). La densité  $\rho$  est calculée à l'aide de l'expression suivante :

$$\rho = \frac{2N \cos \Psi}{tL_t} \quad (4.2)$$

Où  $\Psi$  est l'angle de tilt,  $t$  est l'épaisseur de la lame mince,  $L_t$  est la longueur totale du réseau de droites parallèles. Dans notre cas  $\Psi = 0^\circ$ , et pour toutes les lames minces l'épaisseur est de l'ordre de 150 nm (nous avons utilisé la valeur de  $t = 158\text{nm}$ ).

Pour comparaison nous avons aussi mesuré la densité de dislocation initiale de l'état non déformé qui est de l'ordre de  $1.5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$ . Dans ce cas on n'observe pas de murs de dislocations, mais seulement des empilements. La densité de dislocations totale  $\rho$  coïncide alors avec la densité dans les cellules  $\rho_c$  (Figure 4 - 10).

Le Tableau 4 - 1 présente les densités de dislocations calculées dans les cellules ( $\rho_c$ ), sur les murs de dislocations ( $\rho_w$ ) et la valeur moyenne ( $\rho$ ) calculée à partir de la fraction de surface occupée par les murs ( $f_w$ ).

	$\Delta \epsilon_p$	$N$	$\epsilon_{p,cum}$	$\lambda (\mu\text{m})$	$e (\mu\text{m})$	$f_w$	$\rho_c (m^{-2})$	$\rho_w (m^{-2})$	$\rho (m^{-2})$
<b>Ref</b>	0	0	0	2.38	0.036	/	1.50E+13	/	1.50E+13
<b>1</b>	0.2	4000	8	1.63	0.101	0.10	1.89E+13	2.82E+14	4.52E+13
<b>2</b>	0.2	16000	32	1.31	0.040	0.10	2.84E+13	3.07E+14	5.62E+13
<b>3</b>	0.4	2000	8	1.75	0.038	0.10	2.10E+13	3.22E+14	5.12E+13
<b>4</b>	0.4	8000	32	1.33	0.053	0.10	4.22E+13	3.78E+14	7.58E+13
<b>5</b>	0.8	1000	8	1.74	0.023	0.10	3.03E+13	3.30E+14	6.03E+13

Tableau 4 - 1 : Observations et mesures à partir des images MET sur l'état non-déformé et sur les différents états déformés.  $\Delta \epsilon_p$  représente l'amplitude de déformation plastique,  $N$  le nombre de cycles,  $\epsilon_{p,cum}$  la déformation plastique cumulée,  $\lambda$  la taille des cellules,  $e$  l'épaisseur des joints entre les cellules,  $f_w$  la fraction de surface occupée par les murs,  $\rho_c$  la densité de dislocations dans les cellules,  $\rho_w$  la densité dans le murs,  $\rho$  la densité moyenne

Peu de différences entre les multiples états déformés ont été observées. Un effet marquant réside toutefois dans l'augmentation de la densité de dislocations par rapport à l'état non déformé. La densité de dislocations dans les cellules augmente avec l'augmentation du nombre de cycle pour une valeur de l'amplitude de déformation cyclique donnée. En particulier, en augmentant l'amplitude de déformation, la densité de dislocation augmente légèrement dans les cellules et dans les murs. Par contre, la densité est doublée dans les cellules en augmentant la déformation plastique cumulée de 8 à 32, mais cette densité n'augmente que peu dans les murs.

La taille moyenne des cellules  $\lambda$  est fournie dans le Tableau 4 - 1. Elle est calculée à partir des cartographies observées sur la Figure 4 - 11, en approximant la forme de chaque grain à une ellipse, et calculant la moyenne des deux diagonales sur chaque cellule. La Figure 4 - 13 montre les différents états déformés sur lesquels nous avons réalisé les mesures de taille des cellules.

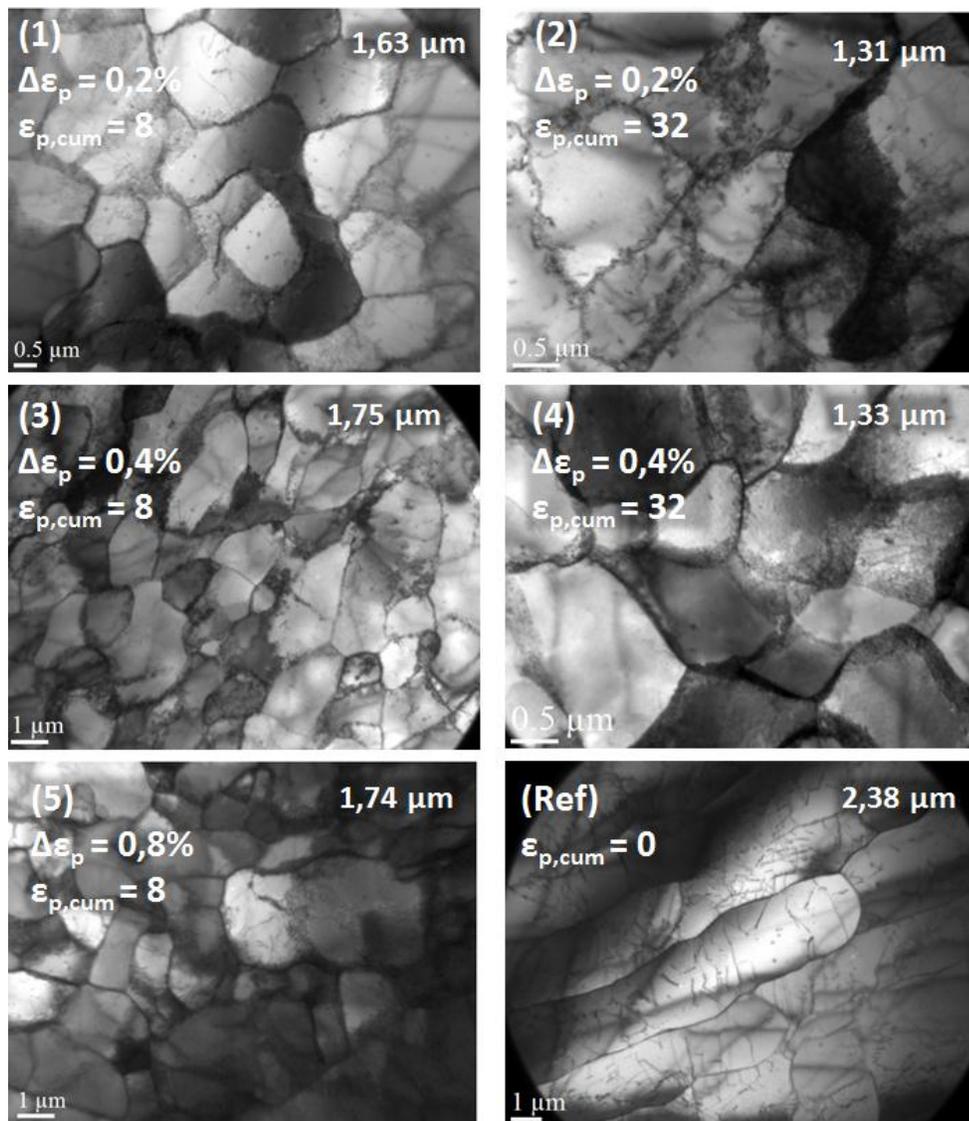


Figure 4 - 13 : Mesures de la taille moyenne des cellules  $\lambda$  à partir des cartographies des cinq échantillons déformés et de l'état non déformé

On peut constater en général une réduction de la taille moyenne par rapport à l'état de référence pour toutes les valeurs de déformations plastiques considérées. En particulier, on observe une réduction de la taille moyenne des cellules suivant l'augmentation de la  $\epsilon_{p,cum}$ . La taille moyenne des cellules est similaire pour  $\epsilon_{p,cum}$  élevée, ce qui suggère qu'on a atteint une condition de déformation stable. A faible  $\epsilon_{p,cum}$  la taille des cellules est comprise entre celle de l'état non-déformé et celle observée pour l'état de déformation plus élevé. Par contre, les valeurs sont différentes en fonction de  $\Delta\epsilon_p = 0.2\%$ ,  $0.4\%$  et  $0.8\%$  (conditions adoucissant et durcissant). Ceci suggère une différente consolidation de la microstructure, fonction de l'amplitude de déformation, ce qui entraîne un comportement macroscopique différent.

Afin de mieux comprendre l'évolution des structures de déformation pour différentes valeurs de  $\Delta\epsilon_p$  et  $\epsilon_{p,cum}$ , nous avons étudié l'évolution de l'épaisseur des joints des cellules (« e » dans le Tableau 4 - 1) et des murs de dislocations. Un mur est une accumulation de dislocations, qui se forme dans les cellules. Il représente un état intermédiaire, qui portera à la formation de nouvelles cellules avec l'augmentation de la déformation plastique. La Figure 4 - 14 montre un exemple des endroits choisis pour réaliser ces mesures pour l'échantillon 5. En particulier, la Figure 4 - 14a montre une cellule de dislocations dont l'épaisseur des joints a été mesurée. La Figure 4 - 14b montre un mur de dislocations à l'intérieur d'une cellule. Plusieurs mesures des épaisseurs ont été prises, et surtout les mesures ont été répétées sur des images prises avec différentes orientations de la lame, pour moyenner la mesure des épaisseurs sur différents tilts.

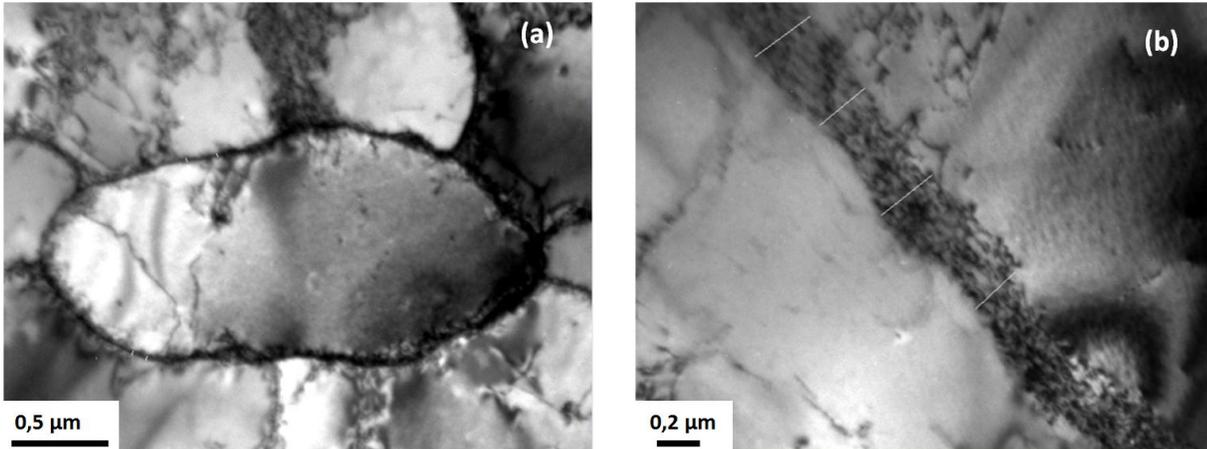


Figure 4 - 14 : exemple des mesures de l'épaisseur des joints des cellules et des murs de dislocations qui se forment dans les cellules

Les résultats des observations sont reportés en Figure 4 - 15. Des variations importantes des épaisseurs ont été observées pour les différentes valeurs de  $\Delta\epsilon_p$  imposées, en particulier pour la condition de consolidation adoucissant.

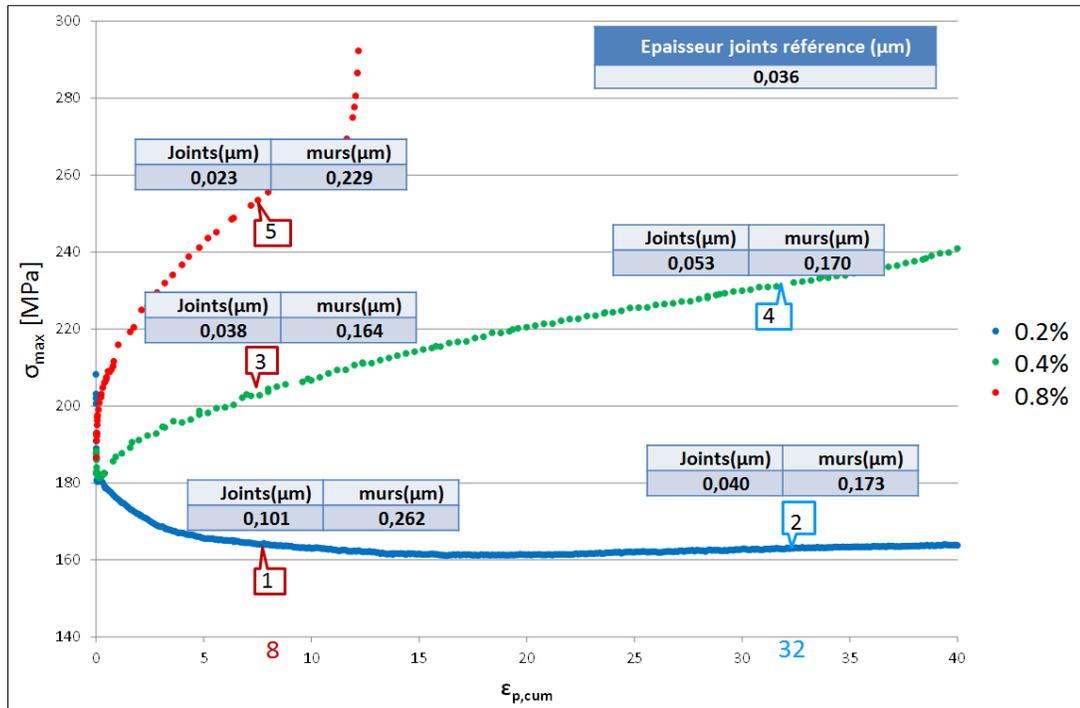


Figure 4 - 15 : Indication des mesures de l'épaisseur des joints des cellules et des murs de dislocations sur les courbes de consolidation

**Δε<sub>p</sub> = 0,2% (adoucissant) :**

- A faible ε<sub>p,cum</sub> (8) les épaisseurs sont les plus importantes. Cela est probablement dû au mouvement des groupes de dislocations qui commencent à s'arranger pour former des nouveaux murs, et à la création de nouvelles dislocations qui s'ajoutent à ces murs, qui deviennent très épais. La densité de dislocations est trois fois plus élevée par rapport à l'état de référence.
- A déformation plastique cumulée élevée (ε<sub>p,cum</sub> = 32), la densité de dislocations a encore augmenté, mais les épaisseurs se sont réduites. En effet, les courbes de consolidations, montrent un adoucissement initial suivi d'une stabilisation. Sur cette base on peut conclure que la première partie du cyclage permet de détruire la structure de dislocations initiale, et permet de mettre en place des murs de dislocations qui vont former, dans la suite, des structures de type cellules. Ensuite, en augmentant ε<sub>p,cum</sub>, ces structures se réarrangent pour former des murs denses et d'épaisseur plus faible.

**Δε<sub>p</sub> = 0,4% (durcissant) :**

- A faible ε<sub>p,cum</sub> les épaisseurs des joints sont similaires à l'état de référence, et augmentent pour une ε<sub>p,cum</sub> plus importante. Cela indique que cette condition de déformation élevée permet le développement rapide d'une structure stable, dans laquelle des nouvelles dislocations se forment et s'arrangent en consolidant la structure. La densité de dislocation, plus élevée par rapport à l'état de référence, évolue légèrement avec la valeur de ε<sub>p,cum</sub>.

Si l'on observe l'évolution des épaisseurs des joints entre les cellules à la même déformation plastique cumulée, on constate que celle-ci dépend fortement de l'amplitude de déformation plastique imposée. En particulier, l'épaisseur des joints diminue avec l'augmentation de  $\Delta\varepsilon_p$ . La variation de l'épaisseur des murs de dislocations dépend, quant à elle, du comportement du matériau : on observe la formation de murs épais dans le cas adoucissant, et d'une structure stabilisée pour des amplitudes de déformation élevées. Ceci peut expliquer les différents types de comportement : à faible  $\Delta\varepsilon_p$  les dislocations peuvent bouger facilement, ce qui donne le comportement adoucissant, par contre, à fort  $\Delta\varepsilon_p$ , la formation soudaine d'une structure stable résulte en un comportement macroscopique durcissant.

Enfin, l'observation des valeurs des densités de dislocations et des épaisseurs des joints des cellules suggère une possible explication pour le différent comportement macroscopique du matériau, adoucissant ou durcissant. Dans le cas de  $\Delta\varepsilon_p = 0,2\%$ , on observe la destruction de la structure initiale, avec la formation de dislocations qui forment des murs épais, qui ensuite se réarrangent pour donner forme aux cellules, et une consolidation de la microstructure avec le cyclage. Ceci est cohérent avec la valeur de la contrainte macroscopique, qui évolue dans la première partie de déformation cyclique, et ensuite reste constante de  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  à 32 (Figure 4 - 3). Pour  $\Delta\varepsilon_p = 0,4\%$  et  $0,8\%$  les joints augmentent d'épaisseur avec le cyclage, de même que la densité de dislocations. On observe donc une stabilisation de la microstructure, avec accumulation des dislocations. Ceci est cohérent avec l'augmentation de la cinématique observée sur les boucles d'hystérésis, supporté par une contrainte maximale qui augmente avec la déformation plastique cumulée, jusqu'à rupture.

Roven et Nes [144] ont réalisé des observations MET des échantillons avec différentes amplitudes de déformation (et comportement adoucissant ou durcissant). Ils observent la formation de structures de dislocations après quelque cycle de déformation. Ensuite, la structure ne change pas fondamentalement, hormis pour l'augmentation de la densité de dislocations. Ils observent, en outre, une réduction de la taille des « sous-grains » avec l'incrément de déformation plastique. Par contre, cette réduction est plus importante pour l'amplitude plus élevée, différemment de nos observations. Ils affirment que l'augmentation de la densité de dislocations se produit dans la première phase de déformation. Ensuite, les dislocations se réarrangent pour former des cellules définies et des murs denses. D'après les auteurs :

- L'adoucissement est probablement dû à la formation de bande de glissement à faible densité de dislocations, qui facilite la déformation plastique jusqu'à atteindre des structures stables, ce qui correspond à la saturation de la contrainte.
- Le durcissement observé à amplitude de déformation élevée est associé à l'écroutissage classique, obtenu par réarrangement des structures de dislocations.

Il conviendrait à l'avenir d'investiguer des conditions de déformation cyclique plus étendues, à la fois vers de plus fortes et de plus faibles amplitudes afin d'avoir des structures de déformation mieux différenciées et conduisant en particulier à la formation de structures dipolaires. Pour l'amplitude de déformation plastique  $\Delta\varepsilon_p = 0.2\%$  on pourrait observer des états intermédiaires entre l'état de référence et la déformation plastique  $\varepsilon_{p,cum} = 8$  (pour laquelle la contrainte est déjà stabilisée). Cela nous permettrait d'observer l'évolution de la microstructure pendant la phase adoucissante, et de comprendre les raisons de ces différences de comportement.

Les mesures de dosage en hydrogène et de perméation électrochimique sur les états de référence et déformés vont permettre d'analyser l'interaction entre les structures de déformations et les différentes quantités d'hydrogène qui diffusent dans le matériau.

### 4.3 Dosage de l'hydrogène

Plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour étudier l'interaction de l'hydrogène avec les matériaux. Les mesures de TDS (Thermal Desorption Spectroscopy) peuvent fournir des informations sur les différentes populations d'hydrogène que le matériau peut contenir (hydrogène interstitiel, ou hydrogène piégé de façon réversible ou irréversible), et sur les différentes énergies de piégeage. Comme montré par Escobar *et al.* dans plusieurs travaux [52–54], ces informations peuvent être obtenues en effectuant des mesures de désorption à différentes vitesses de chauffe. L'avantage des mesures de TDS est de révéler les sites de piégeage et les classer d'un point de vue qualitative (réversibles ou irréversibles) et quantitative.

La distinction entre hydrogène diffusible et piégé est importante surtout lorsque le matériau est sujet à des déformations. En pointe de fissure, par exemple, la contrainte est très élevée, ce qui entraîne une déformation plastique cyclique importante, et donc la formation de structures de dislocations, ainsi que d'autres défauts microstructuraux, qui peuvent agir comme sites de piégeage pour l'hydrogène. L'interaction entre hydrogène et dislocations doit être considérée comme un facteur important pour comprendre le phénomène de la FPH [78,101–103].

Les échantillons utilisés lors de cette étude ont une masse d'environ 0.5 grammes. Après polissage jusqu'au grade 4000, les échantillons sont chargés en hydrogène pendant 24 heures, par chargement électrochimique dans une solution de  $H_2SO_4$ . Le choix du temps de chargement est basé sur une courbe de calibration précédente pour la ferrite. Ce temps est alors suffisant pour saturer complètement l'échantillon en hydrogène. En fait, plusieurs mesures effectuées sur ce matériau ont montré que dans ces conditions on a atteint la solubilité apparente. Dans ces conditions on est dans un domaine de Volmer, dans lequel l'adsorption est prépondérante par rapport à d'autres phénomènes qui peuvent exister dans une cellule électrochimique. Ensuite les échantillons sont placés dans l'azote liquide jusqu'au moment de la mesure pour limiter la désorption.

Après chargement électrochimique, les quantités d'hydrogène absorbé sont déterminées par TDS sur les différents états déformés. Trois vitesses de rampe ont été testées : 115, 230 et 500 K/min. La Figure 4 - 16 montre un exemple de spectre de désorption, obtenu pour l'échantillon 1 pour les trois vitesses de rampe. Il est interpolé à l'aide de plusieurs fonctions gaussiennes, qui nous permettent de séparer les différentes quantités d'hydrogène et de connaître les énergies de piégeage.

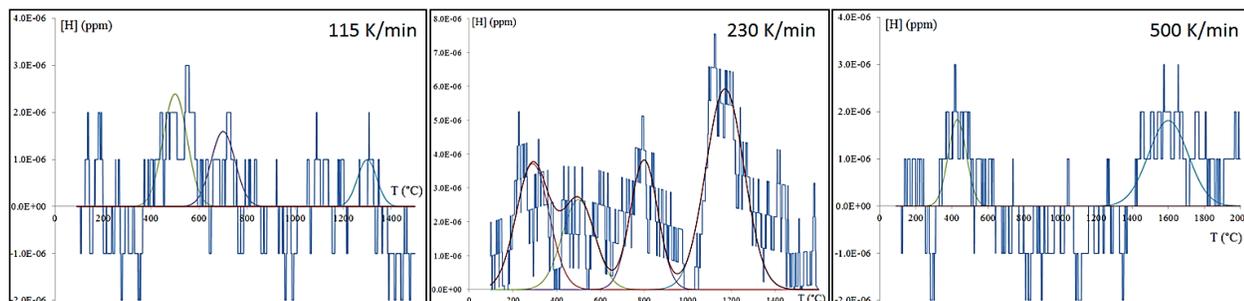


Figure 4 - 16 : Spectres de désorption de l'échantillon 1, réalisés pour les trois vitesses de rampe, 115, 230 et 500 K/min

La vitesse de rampe de température intermédiaire (230 K/min) donne le signal de désorption de l'hydrogène plus propre (meilleur rapport signal/bruit). Les pics observés à des températures voisines de 300K, 800K et 1200K correspondent aux différentes concentrations d'hydrogène, à savoir la concentration en hydrogène interstitiel ( $C_L$ ), en hydrogène piégé de façon réversible ( $C_{Tr}$ ), et en hydrogène piégé irréversiblement ( $C_{Tir}$ ).

Tout d'abord l'échantillon de référence a été testé. Les mesures obtenues sur l'état non-déformé donnent une teneur totale d'hydrogène autour de 0.1 ppm massique. Ceci est cohérent avec l'observation d'un rapport signal/bruit faible. En fait, à cause de la faible teneur en hydrogène et de la faible masse des échantillons, il est difficile de distinguer les différentes quantités d'hydrogène qui désorbent de l'échantillon.

La Figure 4 - 17 présente les spectres obtenus sur les quatre échantillons à une vitesse de balayage de 230 K/min.

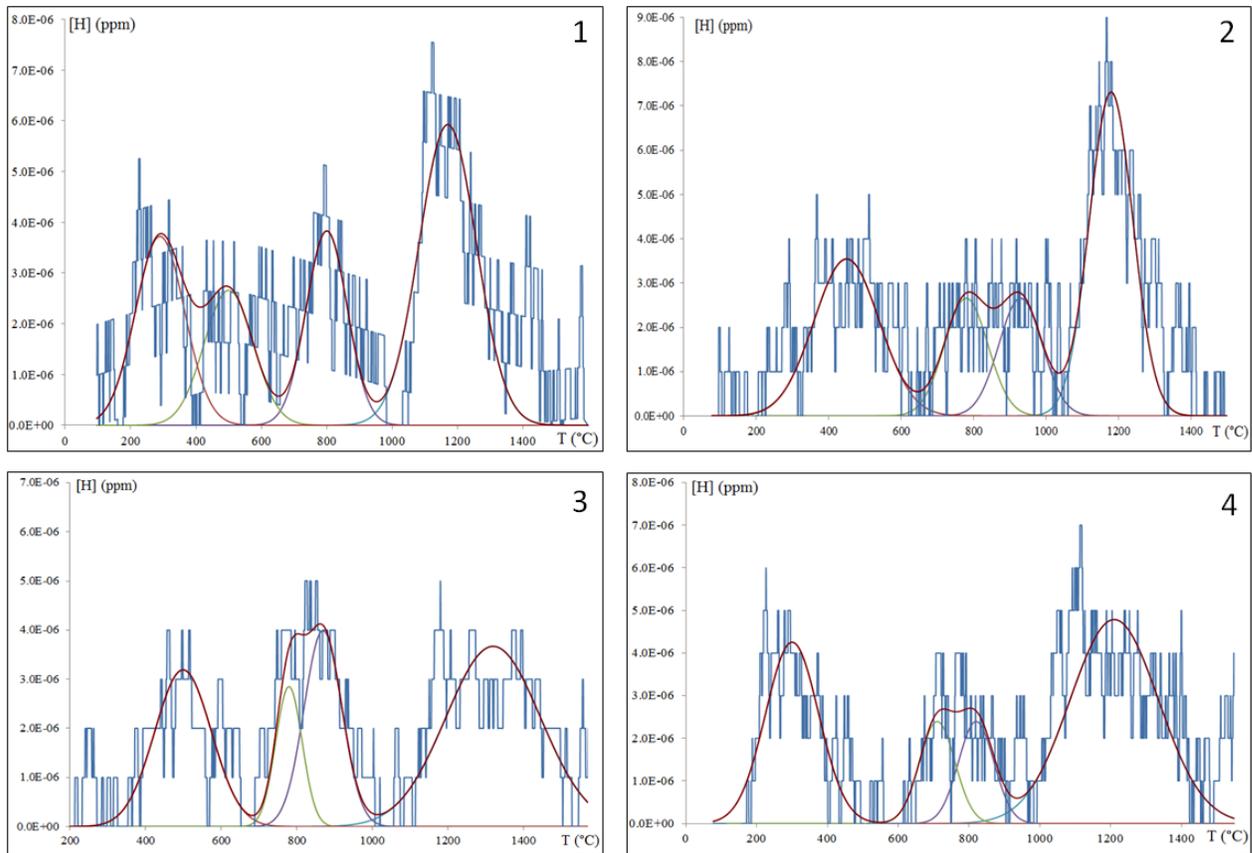


Figure 4 - 17 : Spectres de désorption des quatre échantillons à la vitesse de rampe de 230 K/min

Les spectres présentent tous des pics à des températures voisines pour cette vitesse de rampe. Ceci suggère une énergie de désorption-piégeage de l'hydrogène similaire dans les différents cas. Les valeurs des concentrations mesurées à partir des spectres de désorption sont fournies dans le Tableau 4 - 2.  $C_{Diff}$  représente la concentration d'hydrogène diffusible, c'est-à-dire la somme des concentrations d'hydrogène interstitiel et piégé de façon réversible.  $C_H$  est la concentration totale.

Echantillon	$\Delta\varepsilon_p$	$N$	$\varepsilon_{p,cum}$	$C_L$	$C_{Tr}$	$C_{Diff}$	$C_{Tir}$	$C_H$
<b>Etat référence</b>	/	/	0	0.02	0.08	0.10	0.04	0.14
<b>1</b>	0.2%	4000	8	0.11	0.16	0.27	0.27	0.54
<b>2</b>	0.2%	16000	32	0.16	0.17	0.33	0.34	0.67
<b>3</b>	0.4%	2000	8	0.09	0.11	0.20	0.31	0.51
<b>4</b>	0.4%	8000	32	0.13	0.10	0.23	0.33	0.56

Tableau 4 - 2 : Valeurs des concentrations mesurées à partir des spectres de désorption

La déformation cyclique entraîne une augmentation de la concentration d'hydrogène, et en particulier de l'hydrogène piégé de façon irréversible, par rapport à l'état de référence. Cependant, les écarts entre les différents états déformés sont peu marqués.

Nous pouvons corrélérer l'augmentation de la concentration d'hydrogène  $C_{Tir}$  avec les résultats des observations MET, en particulier la densité de dislocations et la taille des cellules (Tableau 4 - 1):

- $C_{Tir}$  est légèrement plus élevée pour  $\varepsilon_{p,cum} = 32$ , par rapport à  $\varepsilon_{p,cum} = 8$ . Ceci est cohérent avec la petite augmentation des densités de dislocation pour  $\varepsilon_{p,cum}$  qui augmente de 8 à 32. Ceci suggère que l'hydrogène est piégé dans les dislocations qui se forment dans la première partie du cyclage.
- La concentration  $C_{Tir}$  n'évolue que peu avec la variation de  $\Delta\varepsilon_p$ , similairement à l'évolution de la taille des cellules. Ce paramètre peut être donc lié à la taille des cellules, qui diminue au fur et à mesure que la déformation plastique cumulée augmente.

En conclusion, les cellules plus petites et plus denses de dislocations (qui se forment avec le cyclage) représentent des sites préférentiels pour le piégeage de l'hydrogène. Lorsque la déformation plastique cumulée augmente, une plus grande quantité d'hydrogène peut pénétrer, du fait du piégeage. Finalement cette quantité peut atteindre une valeur quatre fois supérieure à la concentration de l'état non-déformé, avec une grande partie de l'hydrogène piégé de façon irréversible dans les défauts microstructuraux (en particulier, des dislocations).

De nombreux auteurs ont observé une concentration d'hydrogène qui augmente avec la déformation plastique [39,91,102,103]. Ainsi Hadam et Zakroczymski [103] ont étudié l'effet de la déformation plastique sur l'absorption de l'hydrogène dans le fer Armco, comparé avec un acier à haut teneur de carbone. Ils ont observé une faible concentration d'hydrogène diffusible, indépendante de la déformation plastique. Par contre l'augmentation de l'absorption totale d'hydrogène avec la déformation plastique peut être attribuée à l'augmentation du piégeage de l'hydrogène. Dans le cas du fer Armco, en particulier, ils ont attribué cet effet au piégeage de l'hydrogène par de nouvelles dislocations générées au cours de la déformation. En conclusion, toute l'augmentation de la concentration d'hydrogène est liée aux défauts microstructuraux qui se forment et qui agissent comme site de piégeage.

A l'avenir, afin d'améliorer la qualité de nos mesures, en considérant la faible solubilité de l'hydrogène dans le fer ARMCO, une augmentation de la masse des échantillons est envisagée afin d'augmenter les quantités d'hydrogène absorbées, et d'augmenter ainsi le rapport signal/bruit sur les mesures.

## 4.4 Perméation électrochimique

La technique de perméation électrochimique permet de suivre la cinétique d'absorption et de désorption de l'hydrogène, et de mesurer les coefficients de diffusion effectifs et les différentes concentrations d'hydrogène.

De nombreuses recherches sur le piégeage de l'hydrogène dans les métaux, en particulier dans le fer et ses alliages, ont été réalisées par la technique de perméation électrochimique, associée souvent aux mesures de TDS [103,160–164]. Hadam et Zakroczymski [103] ont réalisé des mesures de perméation de l'hydrogène à travers des échantillons en fer Armco. Ceci a permis la

détermination de la diffusivité interstitielle et de la concentration d'hydrogène diffusible. En particulier, la diffusivité de l'hydrogène dans le fer Armco était d'environ 280 fois supérieure à celle d'un acier à haute teneur en carbone. Par contre, la solubilité de l'hydrogène dans l'acier à haute teneur en carbone est d'environ 70 fois supérieure à celle dans le fer Armco. Ce qui signifie que le fer Armco a une haute diffusivité mais une faible solubilité. Addach *et al.* [164] ont identifié une influence de l'épaisseur de la membrane de matériau soumise à perméation sur le coefficient de diffusion. Ils ont montré que, lorsque l'épaisseur de l'échantillon augmente, la mobilité de l'hydrogène est réduite et le temps de dépiégeage augmente.

Des mesures de perméation électrochimiques ont été réalisées afin de déterminer le coefficient de diffusion réticulaire de l'hydrogène  $D_L$ . La connaissance du coefficient de diffusion diffusible est nécessaire pour une bonne analyse de la vitesse de désorption de l'hydrogène à partir de l'échantillon préalablement chargé, permettant de faire une distinction entre l'hydrogène diffusible et piégé [165].

La procédure utilisée pour les mesures de perméation est expliquée dans la thèse de Oudriss [166]. La Figure 4 - 18 montre le dispositif expérimental pour la réalisation des mesures de perméation électrochimique. Il est composé de deux cellules thermostatées, une de chargement et l'autre de détection. Les deux compartiments sont séparés par une membrane en fer pur, coupée à partir des éprouvettes oligocycliques, en direction perpendiculaire à l'axe de chargement. Après un polissage mécanique jusqu'au grade 4000 et un polissage électrolytique, cette membrane est insérée dans un porte-échantillon dont l'ouverture est de 5 mm de diamètre, soit une surface active de 0.2 cm<sup>2</sup>.



Figure 4 - 18 : Dispositif expérimental pour réaliser des mesures de perméation électrochimique [164]

Le montage côté chargement est associé à un potentiostat/galvanostat pour la polarisation cathodique. L'électrolyte de chargement est l'acide sulfurique molaire. Le côté détection est relié à un potentiostat pour la polarisation anodique. Dans ce cas l'électrolyte est une solution de 0.1 mol/L de soude NaOH. La Figure 4 - 19 montre un schéma du fonctionnement de la cellule.

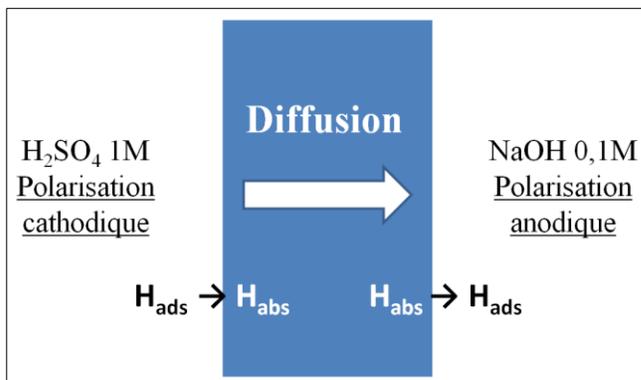


Figure 4 - 19 : Schéma du fonctionnement de la cellule de perméation

Avant le chargement en hydrogène, un potentiel de -350 mV par rapport à ESS (Electrode de référence au sulfate saturé) est appliqué jusqu'à stabilisation (quelques heures pour le fer pur).

La première étape consiste dans le chargement en hydrogène

Ensuite, une densité de courant qui peut varier entre -10 et -100 mA/cm<sup>2</sup> est appliquée pendant le chargement sur la face d'entrée de l'échantillon. La réaction d'évolution de l'hydrogène est alors activée [167], et l'hydrogène adsorbé pénètre dans la membrane du côté chargement sous forme absorbé. Cette quantité d'hydrogène diffuse jusqu'à la face de sortie, où elle sera oxydée en générant un courant dont la valeur représente le flux d'hydrogène en fonction du temps.

La valeur du coefficient de diffusion mesurée pour l'état non-déformé est :  $D_L = 2.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  (dans l'hypothèse que la vitesse de perméation de l'hydrogène mesurée soit entièrement contrôlée par la diffusion réticulaire). Cette valeur est cohérente avec la littérature [103,168,169]. Il s'agit d'une valeur relativement élevée par rapport à d'autres aciers, comme montré par Hadam et Zakroczymski [103] qui reportent une valeur de  $6.2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ , deux ordres de grandeur plus élevée par rapport à un acier à haute teneur de carbone. Kedzierzawski, dans des études sur différents alliages à base de fer, a montré que l'ajout d'éléments d'alliage réduit ou n'a aucun effet sur la diffusivité de l'hydrogène [169].

Cependant, la solubilité de l'hydrogène dans le fer Armco est faible, comme montré dans le paragraphe précédent. En outre, ce matériau possède une capacité de piégeage élevée.

Des essais de perméation électrochimique sont enfin envisagés afin de mesurer le coefficient de diffusion interstitielle de l'hydrogène dans le matériau déformé cycliquement.

## 4.5 Discussion

La technique de perméation fournit des informations sur la diffusivité et la solubilité de l'hydrogène, tandis que la technique de désorption électrochimique permet de distinguer l'hydrogène diffusible du piégeage irréversible. Le fer Armco étudié a une faible solubilité, ce qui complique les essais de désorption, mais il a une diffusivité élevée.

Les résultats préliminaires obtenus dans le Fer Armco ont permis d'identifier la concentration d'hydrogène totale et diffusible pour différents états de déformation cyclique. La quantité totale d'hydrogène absorbé par le matériau augmente avec la déformation plastique. Nous pouvons noter une influence de la déformation cyclique sur la concentration d'hydrogène piégé de façon irréversible, mais il est difficile de distinguer les différents états déformés. La quantité d'hydrogène diffusible n'évolue que peu avec la déformation plastique. Ceci suggère que l'augmentation de l'absorption totale d'hydrogène avec la déformation plastique est due à l'augmentation du piégeage de l'hydrogène. Cet effet peut être attribué à la formation de nouvelles dislocations générées au cours de la déformation, qui agissent comme des sites de piégeage.

Les observations MET sont en accord avec les mesures par TDS où peu de différences sont notées entre les différents états en terme de structures de dislocations et de densité de dislocations. Les différences dans les densités de dislocations, en particulier, sont cohérentes avec les valeurs d'hydrogène piégé dans les différents états déformé, ce qui nous confirme que les dislocations agissent comme sites pour le piégeage irréversible. L'analyse des densités de dislocations et de l'évolution des cellules nous permet d'expliquer les différents comportements macroscopiques du matériau (adoucissant ou durcissant). Dans le cas de faible amplitude de déformation, on observe initialement le mouvement des dislocations, qui commencent à s'organiser pour former des cellules, et, ensuite, on observe une stabilisation de la microstructure avec le cyclage. Ceci est cohérent avec l'effet adoucissant initial, et la stabilisation de la contrainte à partir d'une certaine déformation plastique cumulée. Par contre, pour une amplitude de déformation élevée, on observe la formation soudaine d'une structure stable, et une accumulation des dislocations à l'augmenter de la déformation plastique cumulée, ce qui explique le comportement durcissant du matériau à partir des premiers cycles, qui continue jusqu'à la rupture.

A l'avenir, des tests à amplitudes de déformation plastique plus faibles permettront de mieux étudier l'évolution des structures de dislocation avant la formation des cellules et ainsi quantifier l'évolution des concentrations d'hydrogène durant ces phases.

Des essais de perméation électrochimique sont enfin envisagés afin de mesurer le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans le matériau déformé cycliquement. Ces données seront ensuite introduites dans un modèle pour reproduire la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure.

La partie III de ce manuscrit décrit la modélisation de la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux. Les observations et les considérations qu'on vient de décrire doivent être prises en compte, bien que le modèle ait été développé avec les résultats expérimentaux obtenus sur un acier martensitique inoxydable (15-5PH). Il s'agit d'un modèle de zone cohésive, dont la loi de traction-séparation est influencée par la présence de l'hydrogène. Il représente alors le mécanisme HEDE, avec une réduction de l'énergie de cohésion des éléments cohésifs en présence d'hydrogène. Par contre l'influence de l'hydrogène sur la loi élastoplastique du matériau a été implémentée, afin de représenter un mode de rupture plus proche de la réalité. Dans le futur nous allons effectuer des essais de déformation plastique sous hydrogène, afin de connaître exactement son effet sur le comportement mécanique du fer pur. L'implémentation de la loi de comportement influencée par l'hydrogène est l'un des développements futurs de ces travaux de thèse. Une autre modification importante du modèle est l'incrément de la composante de diffusion liée à la contrainte hydrostatique, qui permet de représenter une diffusion et une concentration d'hydrogène plus élevées en pointe de fissure. Dans le futur, dans l'implémentation des propriétés du fer pur, nous pourrons utiliser les informations sur la variation des différentes quantités d'hydrogène en fonction de la déformation plastique afin de définir précisément l'augmentation de diffusion que l'on observe en pointe de fissure, où les contraintes et les déformations sont très élevées.

### **III Amélioration d'un modèle de zone cohésive pour l'étude de la fissuration assistée par l'hydrogène**

La troisième partie du manuscrit présente le développement d'un modèle de zone cohésive avec une loi de traction - séparation spécifique, capable de rendre compte de la diminution de la résistance à la fissuration en présence d'hydrogène. D'un point de vue plus fondamental, ce modèle nous donne l'opportunité de mieux comprendre le rôle de l'hydrogène dans la modification des mécanismes d'endommagement en pointe de fissure. Cette partie poursuit les travaux de thèse de Clara Moriconi [12]. Bien que le modèle présenté dans [12] soit capable de prédire des vitesses de propagation de fissures plus élevées sous hydrogène, il présente certaines limites. Ces verrous motivent le besoin d'approfondir le modèle, et de l'enrichir avec des informations dérivées des observations expérimentales.

Cette partie commence par un bilan bibliographique sur la méthode de zone cohésive. On y décrit les étapes de construction d'un modèle de zone cohésive pour la simulation de la propagation de fissures de fatigue assistée par l'hydrogène gazeux. On présente notamment la formulation du modèle dans le cadre thermodynamique, l'évolution de la variable d'endommagement des éléments cohésifs, l'influence de l'hydrogène sur les paramètres de la TSL, et la diffusion couplée de l'hydrogène. L'implémentation du modèle dans le code éléments finis Abaqus est ensuite abordée. Les principaux résultats obtenus par Clara Moriconi [12] sont enfin présentés.

Par ailleurs, afin de compléter la caractérisation expérimentale de la fissuration sous hydrogène, plusieurs essais de fissuration ont été menés sur l'acier inoxydable martensitique 15-5PH. Les résultats des essais de fissuration sous différentes atmosphères, conditions de pression et de fréquence, sont présentés, et les courbes sont analysées pour mettre en évidence l'effet de l'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissures. Les observations des surfaces de rupture sont montrées et le changement des modes de rupture est analysé.

Des mesures de la déformation hors plan autour de la fissure (à l'échelle micrométrique) permettent de quantifier l'effet de l'hydrogène sur la plasticité en pointe de fissure. La variation de la déformation plastique observée en présence d'hydrogène constitue un indicateur du changement des mécanismes de propagation de fissure, en accord avec les observations au MEB, en soulevant la discussion sur la pertinence des mécanismes HEDE-HELP-AIDE.

Le dernier chapitre présentera les modifications apportées au modèle 2D, ainsi que leur influence sur les résultats numériques. Le modèle de zone cohésive influencé par l'hydrogène représente le mécanisme HEDE, c'est-à-dire la réduction de l'énergie de cohésion en présence d'hydrogène. Deux modifications principales ont été introduites dans le modèle afin de prendre en compte et de coupler les différents mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène :

- L'observation expérimentale de la localisation de la plasticité autour de la fissure suggère la présence d'un mécanisme de modification du comportement local de type HELP et/ou AIDE. L'implémentation d'une loi de variation de la limite d'élasticité  $\sigma_y$  en fonction de

la concentration d'hydrogène, permet de se rapprocher des observations expérimentales sur la déformation plastique hors plan.

- Ensuite, la contribution à la diffusion des différentes composantes de la loi de Krom a été étudiée, afin de représenter une plus grande pénétration de l'hydrogène et une accumulation en pointe de fissure. Cette modification, combinée à l'influence de l'hydrogène sur la plasticité, pourra permettre de se rapprocher aux résultats expérimentaux sur les vitesses de propagation et sur la déformation hors plan.

## Chapitre 5

# Modélisation de la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène

L'un des principaux objectifs de cette étude est le développement d'un modèle robuste et simple, capable de prédire la tenue en fatigue des matériaux métalliques en présence d'hydrogène gazeux.

L'objectif de ce chapitre est la description d'un modèle de zone cohésive (MZC), choisi pour la simulation de l'endommagement dans le matériau. On s'attardera sur la formulation du modèle, et en particulier sur le développement d'une loi de traction-séparation (en anglais « Traction-Separation Law », TSL) spécifique, apte à décrire la dégradation progressive des contraintes cohésives sous chargement cyclique, et sensible à la présence d'hydrogène.

Ensuite on présentera les résultats numériques obtenus par Clara Moriconi [12] comparés aux résultats de la campagne expérimentale, en mettant l'accent sur les possibilités et les limitations du modèle.

### 5.1 Modèles de zone cohésive (MZC)

Dans la littérature, plusieurs techniques ont été proposées pour modéliser le phénomène de la fissuration. On peut mentionner entre autres les approches globales, dont les méthodes de l'intégrale  $J$  [170,171] et la méthode CTOD [172], les modèles micromécaniques (dont celui de Gurson [173] qui en est le représentant le plus couramment utilisé), les modèles de la mécanique de l'endommagement [174,175], et des approches plus récentes, telles que la méthode des éléments finis étendus (X-FEM) [176,177], et la méthode de zone cohésive, proposée initialement par Dugdale [178] et Barenblatt [179].

Scheider [180] dans ses travaux présente les principes du MZC. Dugdale [178] et Barenblatt [179], en se basant sur la considération de l'impossibilité d'avoir des contraintes infinies en pointe de fissure, ont supposé qu'une certaine zone de la pointe de fissure subit des contraintes cohésives (Figure 5 - 1). Dugdale suppose une contrainte constante, égale à la limite d'élasticité (Figure 5 - 1 gauche), alors que Barenblatt suppose que cette contrainte est fonction de la distance à la pointe de la fissure, et dépend du matériau et des conditions de chargement (Figure 5 - 1 droite).

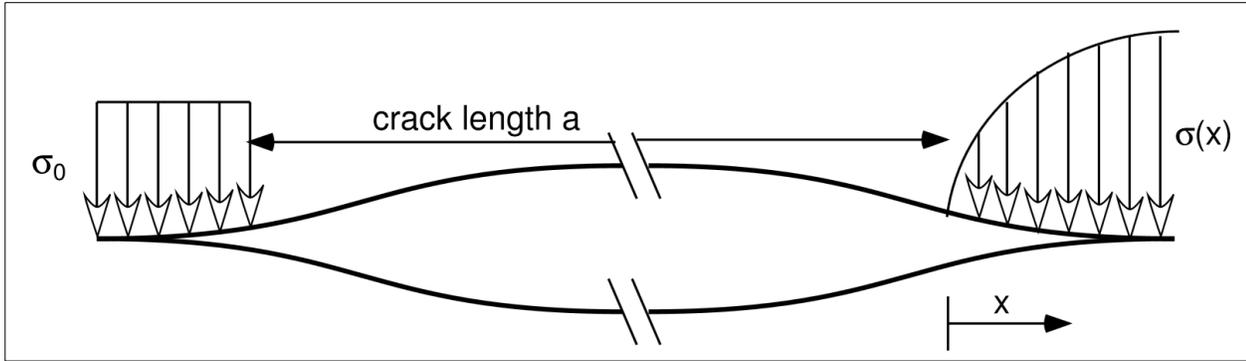


Figure 5 - 1 : Représentation de la contrainte cohésive en pointe selon les théories de Dugdale (sur la gauche) et Barenblatt (sur la droite) [180]

Les éléments cohésifs sont des éléments d'interface, placés entre les éléments de volume (éléments 2D en dehors de la zone cohésive), que dorénavant nous appellerons éléments de bulk. Les éléments cohésifs sont placés sur le chemin de fissure supposé. L'idée principale de cette méthode est basée sur l'endommagement progressif des éléments cohésifs, qui perdent en rigidité jusqu'à la rupture. Cette rupture est une déconnexion des deux faces de l'élément cohésif, qui représente la propagation de la fissure. A noter que l'endommagement des éléments de bulk n'est pas pris en compte par cette méthode.

Hillerborg [181] fut le premier à appliquer cette méthode aux éléments finis pour la simulation de la propagation d'une fissure dans un matériau fragile. Des études plus récentes ont une approche légèrement différente de l'idée initiale : dans ce cas la contrainte est fonction de l'ouverture de l'élément cohésif, et non de la distance à partir de la pointe de fissure (comme proposé par Barenblatt).

Scheider [180] dans ses travaux présente l'implémentation du MZC dans le code éléments finis Abaqus. Dans ce cadre, le matériau est divisé en deux parties : des éléments de volume (bulk), caractérisés par une loi de comportement adaptée, et des éléments cohésifs, placés entre les éléments de bulk sur le trajet de fissuration, qui décrivent l'endommagement du matériau. Cette méthode est particulièrement intéressante, pour sa flexibilité et son adaptabilité à un grand nombre de cas, différant par le matériau et les mécanismes de fracture.

L'utilisation d'un modèle de zone cohésive, pour ses propriétés, permet la simulation du comportement d'une structure « modèle » (CT) dont on connaît le trajet de fissuration. En plus, comme montré par Scheider [180], l'implémentation dans le code éléments finis Abaqus est plutôt simple. Dans cette étude, nous nécessitons d'un outil de compréhension des mécanismes davantage que de prédiction quantitative des vitesses de fissuration en présence d'hydrogène. Pour sa simplicité et sa cohérence avec les mécanismes d'endommagement, une approche par zone cohésive a été choisie [12].

### 5.1.1 Loi de traction-séparation

Les éléments cohésifs représentent la diminution des contraintes cohésives lors de l'endommagement progressif du matériau, alors que les éléments de bulk ne sont pas affectés par l'endommagement.

La relation constitutive entre la contrainte de traction  $\vec{T}$  et l'ouverture  $\vec{\delta}$  (ou séparation) des interfaces de l'élément cohésif est appelée loi de traction-séparation (TSL). Elle représente le comportement mécanique effectif de l'interface, dû au processus de décohesion. Cette méthode est utilisée pour modéliser un grand nombre de cas différents. Sa flexibilité est due à l'opportunité de donner la forme souhaitée à la TSL. L'utilisateur a alors le contrôle complet sur l'évolution des contraintes et de l'endommagement dans le matériau.

La littérature contient désormais une large variété de lois cohésives, qui s'adaptent à des problèmes variés : il existe des lois linéaires, multilinéaires, polynomiales, exponentielles, etc. Ces lois peuvent être adaptées à des chargements monotones ou cycliques, pour la propagation de fissures de fatigue [182–185]. La TSL doit être choisie en relation avec les mécanismes d'endommagement qui se produisent en pointe de fissure. Ainsi, selon Scheider et Brocks [184], les différentes formes de la TSL permettent de décrire la rupture transgranulaire, intergranulaire, la coalescence de micro cavités dans un matériau ductile, la séparation d'interfaces, ou la délamination des composites (Figure 5 - 2).

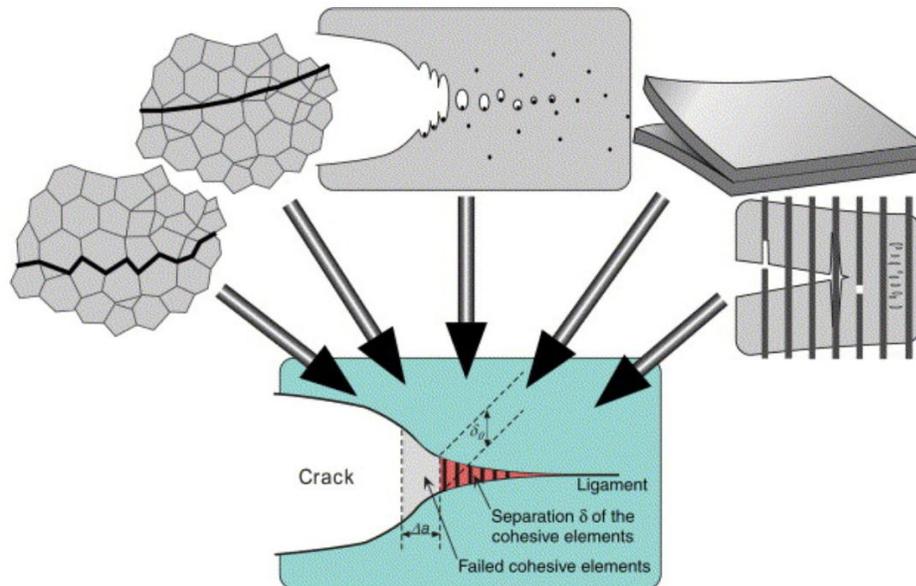


Figure 5 - 2 : MZC pour la modélisation de la propagation de fissures pour différent types de phénomène : rupture transgranulaire, intergranulaire, coalescence de micro cavités, séparation d'interfaces, ou délamination des composites [184]

Scheider et Brocks [186] ont étudié l'influence de la forme de la TSL sur la rupture sous chargement monotone. Ils ont observé une influence non négligeable de ce facteur sur les résultats des simulations.

La « process zone » est la zone en pointe de fissure où les éléments cohésifs réagissent à des contraintes de traction. Bouvard *et al.* [182] utilisent une TSL exponentielle (Figure 5 - 3a), et proposent un schéma distinguant une « forward zone » d'une « wake zone ». Dans ce cas, la « process zone » est représentée par les éléments cohésifs compris entre A et E (depuis le début de la contrainte jusqu'à la rupture), la « forward zone » est comprise entre A et C (c'est-à-dire où la contrainte cohésive augmente), et la « wake zone » est comprise entre C et E (contrainte cohésive qui diminue).

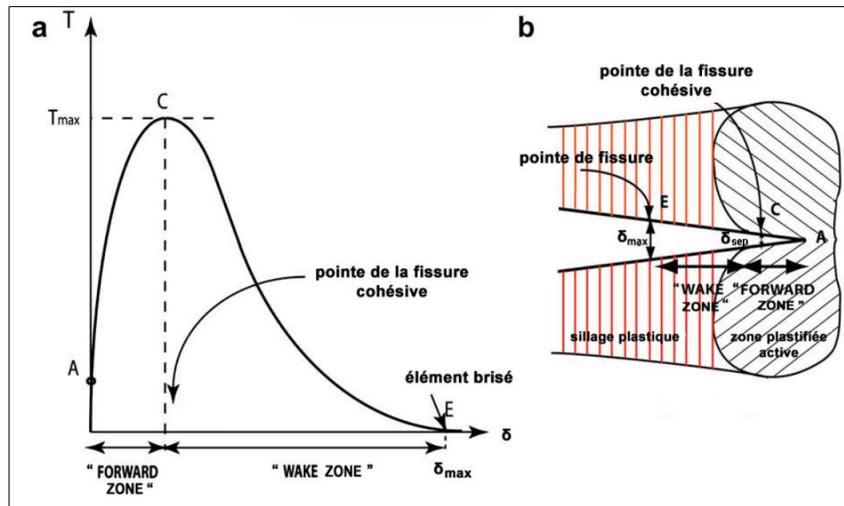


Figure 5 - 3 : TSL (a) et représentation de la « process zone » en pointe de fissure (b) [182]

Sur la Figure 5 - 3 la contrainte maximale atteinte par l'élément cohésif est nommée  $T_{max}$ , et l'ouverture critique  $\delta_{max}$ . Ces deux paramètres définissent la hauteur et la largeur de la TSL. Un autre paramètre important est la rigidité initiale, qui doit être suffisamment élevée afin d'éviter d'affecter la rigidité du modèle avant le début de l'endommagement. Idéalement, la rigidité initiale devrait être infinie. Numériquement, on ne peut pas choisir des valeurs infinies. En plus, le choix de valeurs très élevées peut amener à des problèmes de convergence, et à des incréments très petits. Compte tenu de ces considérations, il faut donc trouver une valeur optimale.

En conclusion, la forme de la TSL est exprimée par une relation entre la contrainte cohésive  $T$  et l'ouverture  $\delta$ , valable dans la « process zone ».  $T$  vaut 0 ailleurs :

$$T(\delta) = \begin{cases} f(\delta), & 0 \leq \delta \leq \delta_{max} \\ 0, & \delta \geq \delta_{max} \end{cases} \quad (5.1)$$

L'énergie de séparation dissipée par l'élément cohésif, ou énergie de rupture est :

$$\int_0^{\delta_{max}} T(\delta) d\delta \quad (5.2)$$

Ce paramètre peut être utilisé au lieu de l'ouverture critique comme critère de ruine de l'élément. Il peut être démontré que cette énergie équivaut à l'intégrale  $J$  [170].

### 5.1.2 MZC en fatigue

Plusieurs expressions de TSL se sont révélées inappropriées pour décrire la propagation d'une fissure sous chargement cyclique. Nguyen *et al.* [185], par exemple, ont montré qu'un chargement cyclique d'amplitude constante empêche l'avancement de la fissure, à cause de la redistribution des contraintes. Pour surmonter ce problème, des lois « irréversibles » adaptées aux chargements cycliques ont été développées.

Roe et Siegmund [187] ont ainsi proposé une formulation spécifique de la TSL pour décrire la propagation de fissures de fatigue (Figure 5 - 4a). L'allure de la TSL est exponentielle sous chargement monotone. L'endommagement sous chargement cyclique est décrit par une variable d'endommagement à l'évolution irréversible. Dans ce cas on n'observe pas de perte de rigidité. Par contre l'ouverture de l'élément est irréversible, avec, par conséquence, une réduction de la contrainte maximale et de l'énergie de rupture.

Bouvard *et al.* [182] ont également utilisé une loi monotone exponentielle. Par contre, ils décrivent l'endommagement dû à un chargement cyclique comme une réduction de la rigidité de l'élément (Figure 5 - 4b), avec une diminution conséquente de l'énergie de rupture.

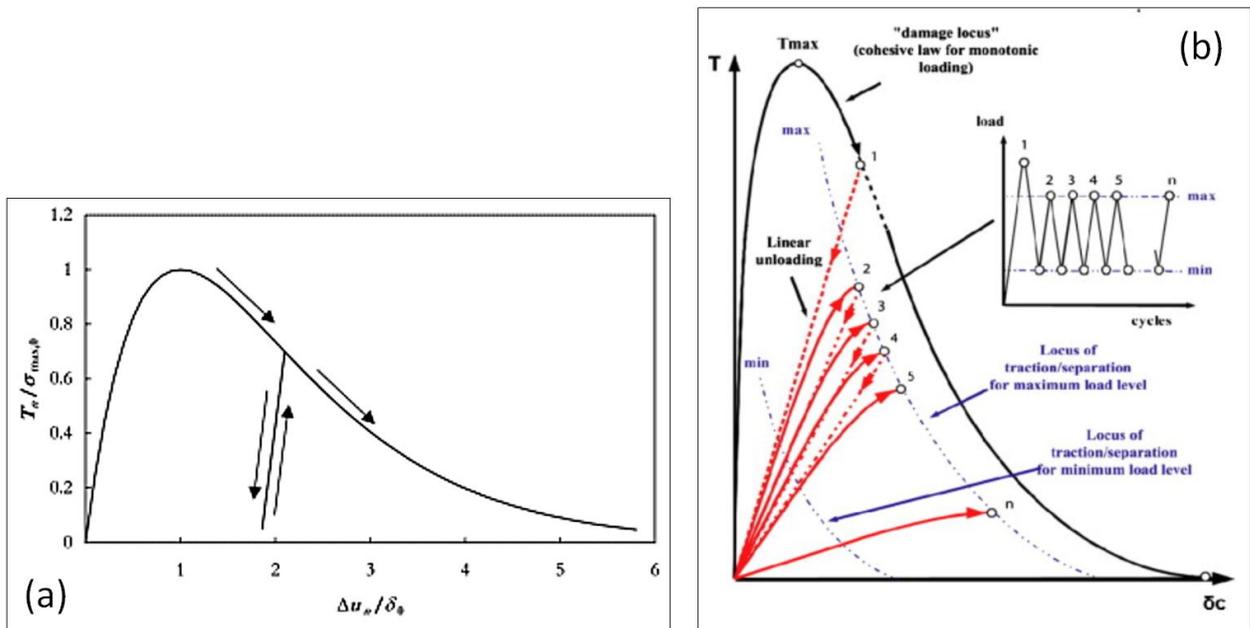


Figure 5 - 4 : Evolution des lois de traction-séparation « irréversibles » proposées par Roe et Siegmund [187] (a), et par Bouvard *et al.* [182] (b)

### 5.1.3 MZC influencé par l'hydrogène

Le modèle HEDE suppose que l'hydrogène dissout dans le matériau diminue l'énergie de cohésion du réseau métallique, en favorisant une rupture fragile [77]. Comme montré dans le paragraphe 5.1.1, cette énergie est représentée par l'aire sous la courbe de la TSL.

Insérer l'influence de l'hydrogène dans le modèle de zone cohésive signifie alors réduire l'aire sous la TSL en fonction de la concentration d'hydrogène dans le matériau.

Dans le paragraphe 1.3.1 nous avons défini le taux de recouvrement  $\theta$  comme le rapport entre la surface du matériau recouverte par les atomes d'hydrogène adsorbé et la surface totale disponible pour l'adsorption. La valeur de  $\theta$  sera alors comprise entre 0 et 1, où 0 correspond à l'absence d'hydrogène dans les sites d'adsorption présents sur la surface libre, et 1 correspond à la totalité des sites d'adsorption occupée par les atomes d'hydrogène. Le taux de recouvrement en hydrogène  $\theta$  peut être exprimé à partir de la concentration  $C$  d'hydrogène en solution, comme observé dans l'équation 1.1, reformulée ici :

$$\theta = \frac{C}{C + \exp\left(\frac{-\Delta G_b^0}{RT}\right)} \quad (5.3)$$

où  $\Delta G_b^0$  représente la différence d'énergie libre entre la surface et le cœur du matériau,  $R$  est la constante des gaz parfaits et  $T$  est la température.  $C$  représente la concentration en hydrogène : certains auteurs utilisent la concentration interstitielle  $C_L$  [188], d'autres utilisent la concentration totale, comme par exemple Olden [189]. Moriconi, dans ses travaux de thèse [12], a choisi d'utiliser la concentration totale.

Jiang et Carter [29] ont utilisé un cycle de Born-Haber afin de quantifier l'influence néfaste de l'hydrogène sur l'énergie de séparation idéale (en l'absence de plasticité). Ils ont évalué cette énergie pour le fer pur de microstructure cubique centrée, en absence d'hydrogène et pour différentes valeurs de taux de recouvrement  $\theta$ .

Le cycle de Born-Haber consiste en la décomposition de la décohésion du matériau soumis à l'hydrogène en trois étapes : tout d'abord l'hydrogène dissous est retiré ; l'énergie de rupture idéale est calculée ; enfin, l'hydrogène est rajouté sur les surfaces de séparation. L'évolution de l'énergie idéale peut être alors exprimée en fonction du taux de recouvrement  $\theta$  :

$$2\gamma(\theta) = -\Delta H_S + 2\gamma(0) + E_{ad}(\theta) \quad (5.4)$$

où  $\Delta H_S$  représente l'énergie de dissolution de l'hydrogène dans le métal,  $2\gamma(0)$  est l'énergie de rupture idéale et  $E_{ad}$  représente l'énergie d'adsorption et de dissociation de l'hydrogène moléculaire en atomes d'hydrogène sur la surface de séparation.

Jiang et Carter ont montré que l'énergie de rupture idéale dépend quasi-linéairement du taux de recouvrement en hydrogène  $\theta$ . La Figure 5 - 5 montre cette dépendance, calculée pour l'aluminium et le fer.

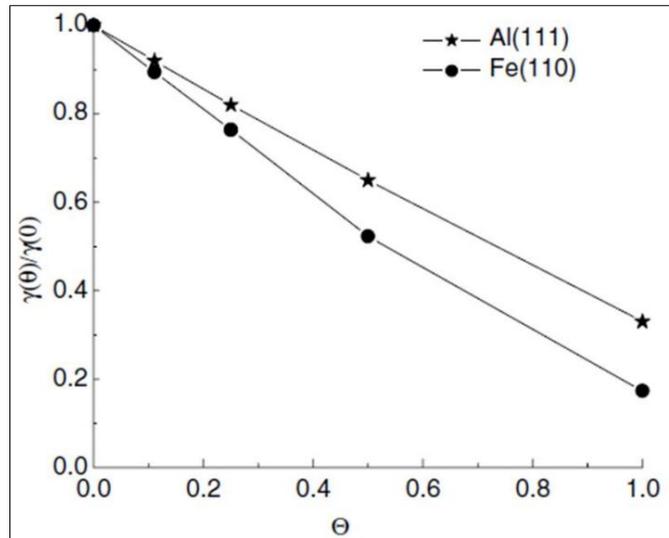


Figure 5 - 5 : Evolution de l'énergie de rupture idéale en fonction du taux de recouvrement en hydrogène  $\vartheta$  [29]

Van der Ven et Ceder [190,191], avec des calculs ab initio sur un MZC, ont montré que la présence d'hydrogène mène à une réduction de la contrainte maximale de décohesion. Par contre l'ouverture critique n'est pas influencée par la présence d'hydrogène. Ils ont utilisé une TSL bilinéaire avec ces hypothèses. La Figure 5 - 6 montre l'influence du taux de recouvrement  $\theta$  sur la TSL normalisée.

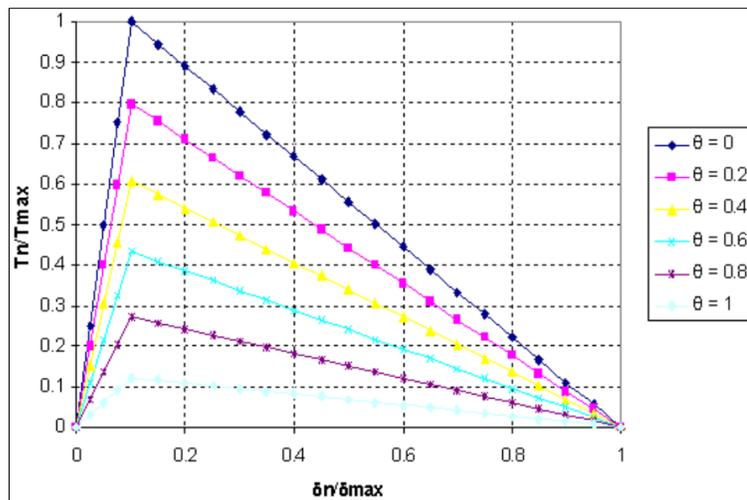


Figure 5 - 6 : Influence du taux de recouvrement  $\vartheta$  sur la TSL bilinéaire normalisée, avec l'hypothèse d'ouverture critique indépendante de  $\vartheta$  [191]

Cette approche montre une fois de plus que l'utilisation d'un MZC pour la modélisation de la FPH est cohérente avec la théorie HEDE. La diminution de l'énergie de séparation montre qualitativement l'influence néfaste de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration dans les métaux. Cette approche a été choisie pour l'étude développée dans les travaux de thèse de Clara Moriconi [12], et poursuivie dans le présent travail.

### 5.1.4 Cadre thermodynamique

La plupart des MZC de la littérature a été développée de manière phénoménologique. Moriconi [12], à l'instar de Bouvard *et al.* [182] et Turon *et al.* [192], a développé son modèle dans le cadre de la Thermodynamique des Processus Irréversibles. Dans ce paragraphe, les points principaux de ce développement sont résumés.

Pour la construction du modèle dans le cadre de la Thermodynamique des Processus Irréversibles nous allons sélectionner tout d'abord les variables d'état. A la variable observable de séparation  $\vec{\delta}$  (classiquement utilisée dans les MZC), on adjoint une variable interne scalaire d'endommagement  $D$  censée représenter la dégradation progressive du matériau. A partir des variables d'état, on construit un potentiel thermodynamique  $\phi(\vec{\delta}, D)$ .

L'expression de la TSL proprement dite (relation entre le vecteur des contraintes cohésives  $\vec{T}$  et la séparation  $\vec{\delta}$ ) est obtenue par dérivation de  $\phi$  par rapport à  $\vec{\delta}$  :

$$\vec{T} = \frac{\partial \phi}{\partial \vec{\delta}} \quad (5.5)$$

Dans le cadre de la Thermodynamique des Processus Irréversibles, la puissance dissipée  $P$  au cours de tout processus doit être inconditionnellement positive. L'inégalité de Clausius-Duhem combine les deux premiers principes de la thermodynamique et le théorème de l'énergie cinétique, dans l'hypothèse des petites perturbations (HPP). Cette inégalité s'écrit :

$$\vec{T} \cdot \dot{\vec{\delta}} - \dot{\phi} = P \geq 0 \quad (5.6)$$

où  $\vec{T} \cdot \dot{\vec{\delta}}$  représente la puissance développée par les contraintes cohésives.

La force thermodynamique  $Y$  associée à la variable d'endommagement  $D$  est définie comme :

$$Y = -\frac{\partial \phi}{\partial D} \quad (5.7)$$

La force thermodynamique  $Y$  est une forme quadratique définie positive [193]. L'association des équations 5.5 et 5.7 permet d'écrire la puissance dissipée par unité de surface sous la forme :

$$P = Y \cdot \dot{D} \quad (5.8)$$

Le respect de l'inégalité de Clausius-Duhem impose alors que l'évolution de la variable d'endommagement  $D$  soit irréversible ( $\dot{D} \geq 0$ ).

Pour définir l'évolution de la variable  $D$ , on se donne un domaine de réversibilité  $f = 0$  (dans un cadre non-visqueux) [193]. Tant que ce seuil n'est pas atteint, la variable n'évolue pas. Pour décrire la manière dont évolue  $D$ , on définit un potentiel de dissipation  $g$ , fonction à valeur

scalaire de la force thermodynamique  $Y$ , continue, convexe et nulle à l'origine. L'évolution de  $D$  est censée suivre la règle de normalité par rapport à  $g$  :

$$\dot{D} = \dot{\lambda} \frac{\partial g}{\partial Y} \quad (5.9)$$

où  $\dot{\lambda}$  est un multiplicateur déterminé par la relation de cohérence  $\dot{f} = 0$ . L'hypothèse de normalité de l'évolution de  $D$  par rapport au potentiel  $g$  et les propriétés de cette fonction permettent de vérifier l'équation 5.6, et donc le second principe de la thermodynamique. Dans le cas particulier où  $g$  s'identifie à  $f$ , on parle de modèle d'endommagement *associé*.

## 5.2 Formulation du modèle

L'étude bibliographique a montré la nécessité de développer une loi de traction-séparation spécifique pour le problème qu'on veut modéliser.

Dans l'étude présentée ici, une TSL spécifique a été développée dans le cadre de la Thermodynamique des Processus Irréversibles, afin de modéliser la baisse progressive de rigidité lors d'un chargement cyclique, et une réduction de l'énergie de rupture en présence d'hydrogène. Le modèle de zone cohésive est implémenté dans le logiciel d'éléments finis Abaqus. Les paragraphes suivants détaillent les principales étapes du développement du modèle.

### 5.2.1 Développement d'une TSL spécifique dans le cadre thermodynamique

#### *Potentiel thermodynamique*

Pour la construction de la TSL dans le cadre de la Thermodynamique des Processus Irréversibles, on introduit tout d'abord un potentiel thermodynamique  $\phi$  :

$$\phi = \frac{1}{2} k_n (1 - D) \frac{\langle \delta_n \rangle^2}{\delta_0} + \frac{1}{2} k_{comp} \frac{\langle -\delta_n \rangle^2}{\delta_0} + \frac{1}{2} k_t \frac{\delta_t^2}{\delta_0} \quad (5.10)$$

où  $\langle \dots \rangle$  représente la partie positive d'une quantité. Les constantes  $k_n$ ,  $k_{comp}$  et  $k_t$  représentent respectivement la rigidité initiale en traction, la rigidité en compression (de valeur très élevée pour éviter l'interpénétration de la matière) et la rigidité tangentielle. Nous faisons l'hypothèse qu'il n'y a pas d'endommagement en cisaillement, car nous nous intéressons aux chargements de mode I. Le scalaire  $D$  représente la variable d'endommagement.

#### *Evolution de la variable d'endommagement*

Le scalaire  $D$  dans l'équation 5.10 est la variable interne d'endommagement, comprise entre 0 (état initial) et 1 (état complètement dégradé). L'endommagement global correspond ici à la somme des contributions élémentaires liées au chargement monotone et cyclique, qui possèdent

chacune une cinétique propre, s'inspirant en cela de l'approche de Roe et Siegmund [187], qui ont utilisé une variable d'endommagement définie comme la plus élevée des deux contributions, monotone ( $D_m$ ) et cyclique ( $D_c$ ) :

$$D = \max(D_m, D_c) \quad (5.11)$$

Les endommagements  $D_m$  et  $D_c$  évoluent indépendamment l'un de l'autre. L'évolution de la partie monotone de l'endommagement est pilotée par la force cohésive maximale. Par contre, l'évolution de l'endommagement cyclique est pilotée par l'histoire du chargement. Leurs évolutions sont donc déterminées par deux seuils distincts.

L'évolution de l'**endommagement cyclique**  $D_c$  est déterminée par le seuil  $f_c = 0$ , exprimé par la relation suivante :

$$f_c = \int_0^t \langle \dot{Y} \rangle (1 - D_c)^{n_c} d\tau - (C_c + m_c D_c) = 0 \quad (5.12)$$

où  $Y$  est la force thermodynamique associée à l'endommagement. L'équation fait intervenir trois paramètres,  $C_c$ ,  $m_c$  et  $n_c$ .  $C_c$  représente la limite d'élasticité initiale,  $m_c$  contrôle l'énergie de séparation, et  $n_c$  permet de modifier l'énergie de séparation sans modifier de façon significative la valeur maximale de la contrainte cohésive  $T_{max}$ . L'utilisation d'une intégrale sur le temps permet de prendre en compte l'histoire du chargement.

Selon la relation précédente, il ne peut y avoir évolution de la variable cyclique que si la dérivée  $\dot{Y}$  est strictement positive : cela équivaut à  $\delta_n > 0$  (l'élément est sollicité en traction) et  $\delta_n > 0$  (montée en charge).

Tant que le seuil n'est pas atteint ( $f_c < 0$ ), la contribution  $D_c$  n'évolue pas. Lorsque que le seuil est atteint ( $f_c = 0$ ), l'évolution de l'endommagement cyclique peut être déterminée à partir de la relation (5.9), en choisissant  $g(Y) = Y$ , et la relation de cohérence sur  $f_c$  :

$$\dot{D}_c = \frac{k_n}{m_c} (1 - D_c)^{n_c} \langle \delta_n \rangle \frac{\langle \delta_n \rangle}{\delta_0} \quad (5.13)$$

où  $\delta_0$  est un paramètre permettant de rendre adimensionnelle l'expression de  $\dot{D}_c$ .

Parallèlement, l'évolution de la **variable monotone**  $D_m$  est déterminée par la fonction seuil  $f_m$  :

$$f_m = \int_0^t \dot{Y}_{max} (1 - D_m)^{n_m} d\tau - (C_m + m_m D_m) = 0 \quad (5.14)$$

Dans cette relation, le paramètre  $C_m$  contrôle la limite d'élasticité en chargement monotone,  $m_m$  contrôle l'énergie de séparation sous chargement monotone (et donc l'évolution de  $D_m$ ), et  $n_m$  permet de contrôler le profil de la TSL. Dans le cas monotone, on suppose que c'est la valeur maximale de la force thermodynamique  $Y_{max}$  qui pilote l'évolution de l'endommagement.

Tant que le seuil n'est pas atteint ( $f_m < 0$ ), la contribution  $D_m$  n'évolue pas. Lorsque que le seuil est atteint ( $f_m = 0$ ), l'évolution de l'endommagement monotone est également déterminée par la règle de normalité par rapport au potentiel de dissipation  $g$  (de même expression que pour l'endommagement cyclique) et par la relation de cohérence  $\dot{f}_m = 0$  :

$$\dot{D}_m = \frac{k_n}{m_m} (1 - D_m)^{n_m} \dot{\delta}_{n,max} \frac{\delta_{n,max}}{\delta_0} \quad (5.15)$$

L'expression choisie pour  $f_m$  permet de relier l'évolution de l'endommagement monotone au déplacement normal maximal subi au cours du chargement  $\delta_{n,max}$ , ainsi qu'à sa vitesse.

L'équation précédente montre que l'endommagement monotone augmente uniquement si l'ouverture normale à l'instant considéré est supérieure à l'ouverture maximale atteinte pendant le chargement précédent.

La Figure 5 - 7 montre l'évolution de la TSL soumise à un chargement cyclique qui évolue dans le temps. Sur la gauche on observe l'évolution de l'ouverture (normalisée par la valeur maximale) dans le temps. La TSL, sur la droite, montre l'évolution de la contrainte cohésive normale (normalisée par sa valeur maximale) en fonction de l'ouverture normale (normalisée). Dans ce modèle il n'y a pas d'endommagement de l'élément cohésif en cisaillement. Il convient de rappeler que la variable d'endommagement  $D$  est définie comme la plus élevée des deux contributions, monotone et cyclique (équation 5.11).

Dans le chargement initial, de A à B, la valeur de la variable d'endommagement monotone  $D_m$  évolue, et elle est donc plus élevée que  $D_c$ . C'est donc la partie monotone qui pilote l'endommagement. On observe que la contrainte cohésive normale  $T_n$  est limitée par une enveloppe d'allure exponentielle. Ensuite, de B à C, on observe une ouverture négative de l'élément, qui répond avec une rigidité plus élevée en compression. Pendant le chargement cyclique, de D à E la variable cyclique  $D_c$  dévient plus grande de  $D_m$ , ce qui entraîne une baisse progressive de la rigidité. Enfin, de E à F, la variable monotone prend le dessus, jusqu'à rupture.

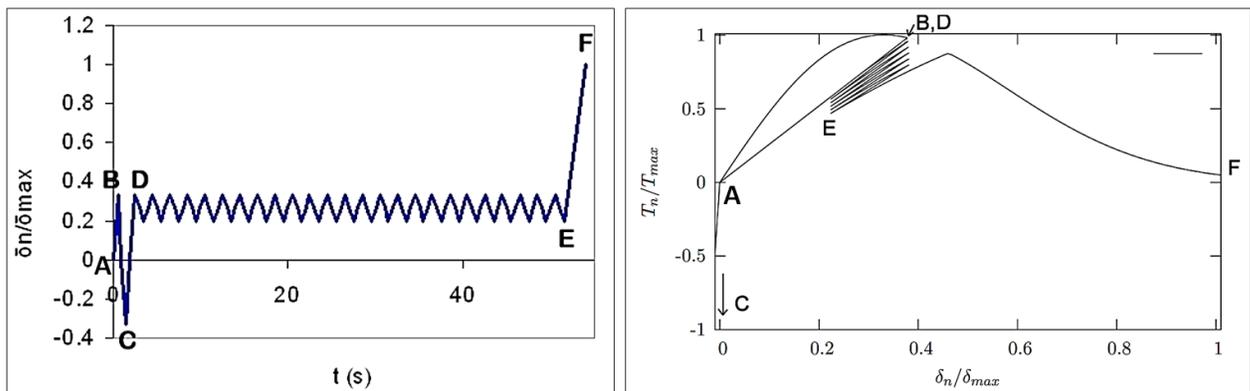


Figure 5 - 7 : Chargement cyclique qui évolue dans le temps (sur la gauche), et évolution respective de la TSL (sur la droite)

### Influence de l'hydrogène sur la TSL

Afin de représenter l'influence néfaste de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration de l'acier étudié, il est nécessaire d'ajouter une dépendance des paramètres de la TSL vis-à-vis de la concentration locale en hydrogène.

La corrélation de Serebrinsky *et al.* [24] exprime la diminution de l'énergie de séparation  $E_{rupt,m}$  sous chargement monotone en présence d'hydrogène en fonction du taux de recouvrement :

$$\frac{E_{rupt,m}(\theta)}{E_{rupt,m}(0)} = 1 - 1,0467\theta + 0,1687\theta^2 = f(\theta) \quad (5.16)$$

où  $(\theta)$  et  $(0)$  signifient que la quantité est respectivement calculée en présence d'hydrogène et sans hydrogène. Pour que l'ouverture critique soit indépendante de la valeur de  $\theta$ , l'évolution de la variable d'endommagement en fonction de l'ouverture normale  $\delta_n$  (contributions monotone et cyclique) doit être indépendante de  $\theta$ . Cette condition peut se traduire par l'indépendance de  $n_m$  et  $n_c$  de la valeur de  $\theta$ .

La corrélation de Serebrinsky et l'hypothèse de l'insensibilité de l'ouverture critique à la présence d'hydrogène ont permis d'exprimer les paramètres du modèle en fonction de  $\theta$  :

$$\frac{k_n(\theta)}{k_n(0)} = \frac{m_m(\theta)}{m_m(0)} = \frac{m_c(\theta)}{m_c(0)} = \frac{C_m(\theta)}{C_m(0)} = \frac{C_c(\theta)}{C_c(0)} = f(\theta) \quad (5.17)$$

La Figure 5 - 8 montre l'influence de la valeur de  $\theta$  sur la forme de la TSL monotone. On observe que l'augmentation de  $\theta$  entraîne une diminution de l'énergie de séparation. Ce résultat est obtenu par une réduction de la contrainte cohésive pour une même ouverture, en laissant inchangée l'ouverture maximale. On notera la réduction de la rigidité initiale ( $k_n$ ) en présence d'hydrogène.

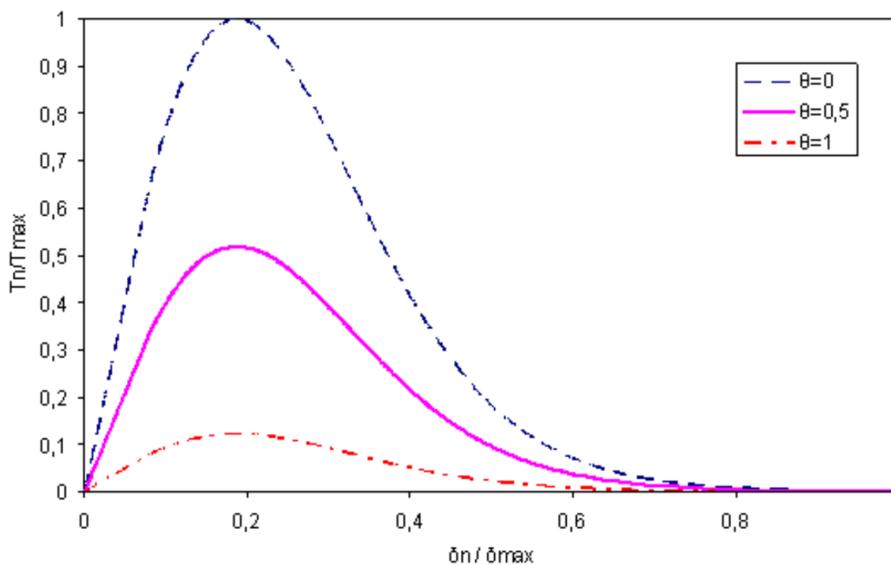


Figure 5 - 8 : Evolution de la TSL en fonction de la valeur du taux de recouvrement en hydrogène  $\vartheta$ . A noter la réduction de la rigidité initiale et de l'énergie de rupture. L'ouverture critique reste inchangée

## 5.2.2 Implémentation de la TSL dans Abaqus

Le code éléments finis Abaqus possède dans sa bibliothèque des éléments cohésifs 2D et 3D [194]. Abaqus propose des lois de comportement avec une évolution linéaire dans la montée en contrainte, et adoucissement linéaire ou exponentiel (Figure 5 - 9). Le modèle proposé est basé sur les travaux de Turon *et al.* [192], qui ont développé un MZC dans un cadre thermodynamique, permettant de satisfaire l'inégalité de Clausius-Duhem, décrite dans le paragraphe 5.1.4.

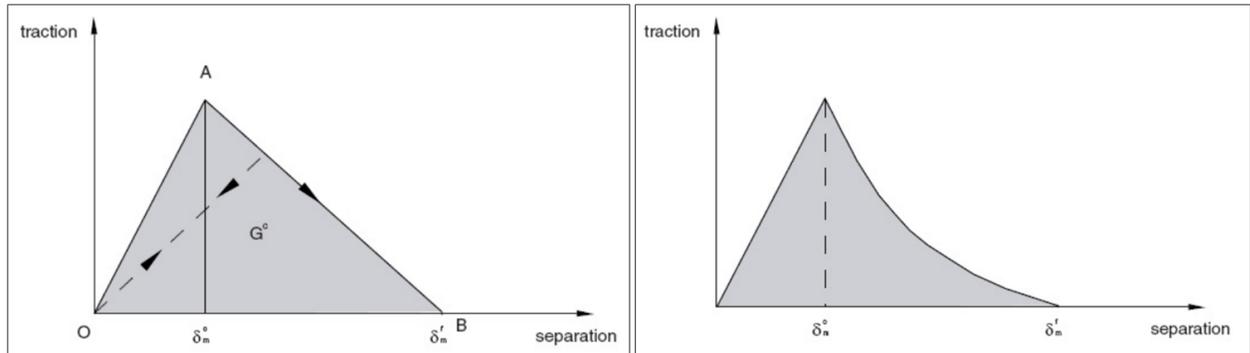


Figure 5 - 9 : Evolution des lois de comportement disponibles dans Abaqus [194]

Le choix des lois de comportement est limité. En plus, celles-ci ne sont pas adaptées aux chargements cycliques.

Afin d'implémenter la TSL souhaitée (présentée dans le paragraphe précédent), une subroutine UEL (User ELeMENT) a été développée par Moriconi [12], afin de définir un élément cohésif personnalisé. La subroutine contient les étapes de calcul pour la construction d'un élément cohésif 2D à quatre nœuds et deux points d'intégration pour le comportement mécanique, possédant un degré de liberté pour la température (noté  $d_H$  pour souligner l'analogie avec la concentration en hydrogène sur la Figure 5 - 10).

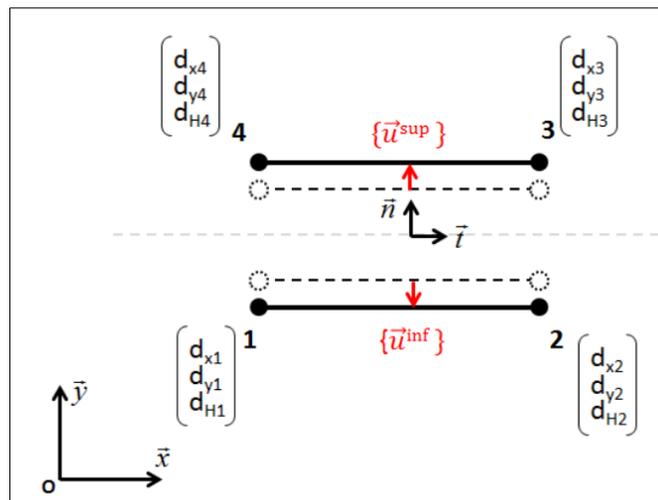


Figure 5 - 10 : Élément cohésif personnalisé développé dans la subroutine UEL

### 5.2.3 Diffusion couplée de l'hydrogène

Le paragraphe 1.4 a présenté les modèles de diffusion de l'hydrogène dans le matériau. Dans cette étude, la diffusion de l'hydrogène dans le matériau est supposée suivre l'équation proposée par Sofronis et McMeeking [42], qui ont exprimé le flux d'hydrogène en fonction de la concentration d'hydrogène interstitiel  $C_L$ . L'équation de diffusion (équation 1.5), qui sera utilisée dans le modèle, est reportée ici :

$$J = -D_L \nabla C_L + \frac{D_L C_L \bar{V}_H}{RT} \nabla \sigma_h \quad (1.5)$$

où  $D_L$  est le coefficient de diffusion interstitiel,  $\bar{V}_H$  est le volume molaire partiel,  $R$  est la constante des gaz parfaits,  $T$  est la température, et  $\sigma_h$  est la contrainte hydrostatique. Dans cette équation, le flux d'hydrogène est constitué de deux termes, qui modélisent la diffusion contrôlée par la loi de Fick, et celle contrôlée par la contrainte hydrostatique. L'équilibre de Oriani [39] permet d'exprimer  $C_T$  en fonction de  $C_L$ , et donc d'utiliser la seule concentration interstitielle dans le calcul du flux d'hydrogène (équation 1.11). Le calcul du gradient de la contrainte hydrostatique  $\sigma_h$  est réalisé à l'aide d'une subroutine USDFLD [12] (on réalise une interpolation de la contrainte hydrostatique à partir des valeurs aux points d'intégration de l'élément, puis on évalue le gradient).

Cette équation est implémentée dans le code de calcul Abaqus par une subroutine UMATHT, présentée dans les travaux de thèse de Moriconi [12]. L'utilisation d'une subroutine dédiée au calcul thermique se justifie par la similitude formelle de l'équation de la diffusion et de l'équation de la chaleur. Le logiciel d'éléments finis ABAQUS ne dispose pas de procédure de calcul couplée mécanique – diffusion. Toutefois, grâce à l'analogie entre l'équation de diffusion de la masse et l'équation de la chaleur, le couplage entre comportement mécanique et diffusion de l'hydrogène peut être modélisé à l'aide d'un calcul "coupled temperature-displacement", disponible dans ABAQUS. Ainsi, la concentration d'hydrogène peut être assimilée au degré de liberté température. Dans le modèle, l'hydrogène ne diffuse pas dans l'élément cohésif, sauf lorsqu'il est rompu, permettant de représenter le contact avec l'hydrogène en pointe de fissure.

C'est l'acier 15-5PH (en raison de sa forte sensibilité à la FPH et de l'abondance de résultats expérimentaux) qui servira de base pour la comparaison entre les essais et les résultats des simulations, réalisées grâce aux outils présentés dans les paragraphes précédents. Ce matériau a été étudié par Hamon [195]. Il a conclu que le comportement plastique du matériau peut être représenté par un modèle d'écrouissage cinématique non-linéaire. Moriconi [12] a développé une subroutine UMAT (User MATerial) pour définir le comportement spécifique de l'élément fini. Ceci permet d'utiliser un comportement de type écrouissage cinématique non-linéaire avec la procédure couplée « température-déplacement » d'Abaqus (impossible autrement). La subroutine UMAT développée décrit des éléments linéaires 2D en contrainte planes. La loi élastoplastique développée est indépendante de la concentration en hydrogène.

### 5.2.4 Bilan

Le tableau suivant présente un schéma récapitulatif des sous-routines utilisées dans le modèle :

Elément cohésif	Elément de bulk	
<p>La sous-routine <b>UEL</b> définit le vecteur des contraintes cohésives, en fonction du vecteur ouverture dans le repère local associé à l'élément.</p> <p>Nécessite des valeurs de concentration en hydrogène.</p> <p>Nécessite la connaissance de l'état plastique de l'élément de bulk adjacent à l'élément cohésif.</p>	<p>La sous-routine <b>UMATHT</b> permet de définir le comportement thermique du matériau.</p> <p>Nécessite du calcul du gradient de contrainte hydrostatique</p>	<p>La sous-routine <b>UMAT</b> permet de définir le comportement mécanique du matériau, à écrouissage cinématique non-linéaire, dans l'hypothèse de contraintes planes.</p>
	<p>La sous-routine <b>USDFLD</b> permet d'évaluer le gradient de contrainte hydrostatique au sein d'un élément de bulk.</p> <p>Permet de déterminer si l'élément plastifie au cours de l'incrément de temps courant.</p>	

### 5.3 Synthèse des résultats de simulation sur le 15-5PH [1]

Moriconi [12] a exploré les capacités des sous-routines présentées dans la section précédente en confrontant le résultat de simulations à une campagne d'essai réalisée sur le 15-5PH. Ces simulations visent à reproduire la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux dans une éprouvette Compact Tension ( $W = 40$ ,  $B = 8$ ) en acier inoxydable martensitique 15-5PH. La modélisation est réalisée en deux dimensions. Cette section récapitule les résultats majeurs exposés dans [12].

Afin de réduire le temps de calcul, une demi-éprouvette CT40 a été modélisée, en utilisant la symétrie géométrique du problème.

Une couche d'éléments cohésifs est placée le long du trajet de fissure, sur toute la longueur de l'éprouvette. Leur comportement est régi par la TSL développée dans la sous-routine UEL. Le reste du modèle est maillé avec des éléments 2D à quatre nœuds en contraintes planes (CPS4T) disponibles dans Abaqus. La loi de comportement du matériau (écrouissage cinématique non-linéaire) a été implémentée à travers la sous-routine UMAT.

Le maillage du modèle est grossier loin de la pointe de la fissure. Par contre il est progressivement raffiné à l'approche de cette dernière, sur une longueur d'environ 1 mm (Figure 5 - 11).

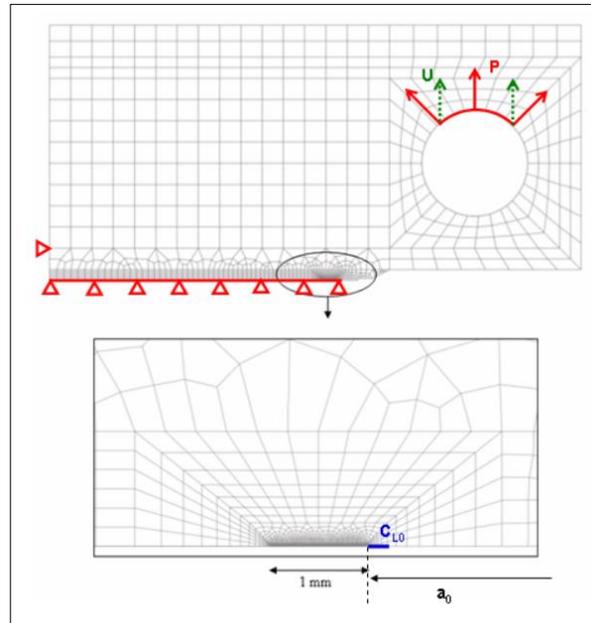


Figure 5 - 11 : Maillage de la demi-épreuve CT40, raffiné en pointe de fissure

Moriconi a réalisé une étude de l'influence de la taille de maille sur les vitesses de propagation de fissures dans le modèle. La taille des éléments en pointe de fissure doit être suffisamment petite pour éviter le phénomène de dépendance au maillage, mais pas trop petite pour des problèmes de temps de calcul. La taille de la zone raffinée doit être suffisamment grande pour contenir la zone plastifiée cyclique en pointe de fissure. McClung et Sehitoglu [196] ont estimé que pour éviter la dépendance au maillage il est nécessaire d'assurer que dix éléments soient présents dans la zone plastifiée en pointe de fissure. Pour notre matériau, en contraintes planes, on peut estimer une taille de zone plastique d'environ  $7 \mu\text{m}$  à  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  [193], donc une taille des éléments de  $0.7 \mu\text{m}$ . Moriconi a réalisé cette étude pour les simulations sous environnement inerte. Elle a analysé l'influence d'une taille de maille de 0.4, 1 et  $2 \mu\text{m}$  sur les vitesses de propagation de fissure, sans pourtant remarquer de différences notables. Elle a alors gardé la taille de  $2 \mu\text{m}$ .

Les conditions aux limites sont réparties entre les éléments cohésifs et de bulk. Les nœuds de la face inférieure des éléments cohésifs sont bloqués dans la direction verticale « y » (Figure 5 - 10 et Figure 5 - 11), ce qui nous garantit la symétrie du modèle et un chargement toujours en mode I. On impose le même déplacement dans la direction horizontale aux nœuds des deux faces des éléments cohésifs, afin d'annuler le cisaillement de l'élément. Afin d'éviter le déplacement du modèle dans la direction « x », un nœud du bulk, loin de la fissure, est bloqué sur cette direction (Figure 5 - 11). Le chargement est imposé sur le trou de l'éprouvette, dans la direction « y », distribué sur le quart supérieur (Figure 5 - 11).

Initialement la concentration d'hydrogène est nulle dans tout le matériau. La présence de l'hydrogène en pointe de fissure est représentée par une condition aux limites sur quelques nœuds en fond de fissure, où la concentration  $C_{L0}$  est imposée au début de l'essai, à une valeur constante pendant la simulation (Figure 5 - 11). La valeur de  $C_{L0}$  est déterminée par la loi de Sievert, en fonction de la pression d'hydrogène gazeux (paragraphe 1.3.2). Comme évoqué précédemment, la concentration avance instantanément lorsque l'élément cohésif est rompu, pour représenter l'atmosphère hydrogénée en pointe de fissure.

### 5.3.1 Propagation de fissures sous différents types de chargement

#### Chargement statique

Pour permettre une première validation, le modèle présenté dans le paragraphe précédent a été testé sous chargement statique, afin de valider l'implémentation de la diffusion couplée de l'hydrogène.

La concentration d'hydrogène diffusible  $C_L$  est initialement nulle en chaque nœud du modèle, ce qui correspond à l'absence de préchargement en hydrogène de l'éprouvette CT. Au cours des calculs, une concentration constante de  $2.08 \times 10^{21}$  atomes/m<sup>3</sup> est imposée sur quelques nœuds en fond de fissure, ce qui correspond à la solubilité de l'hydrogène calculée par la loi de Sieverts (paragraphe 1.3.2) pour une pression d'hydrogène de 1 atm à la température de 300 K.

L'étude des profils de concentration d'hydrogène et de certaines quantités mécaniques (contrainte hydrostatique, déformation plastique équivalente), et la comparaison avec les résultats et les conclusions de Krom *et al.* [55] a permis d'obtenir une première validation qualitative de l'implémentation dans Abaqus de l'équation de diffusion couplée de l'hydrogène. La Figure 5 - 12 montre l'évolution de deux termes du flux d'hydrogène, qui représentent la diffusion contrôlée par la loi de Fick et celle contrôlée par la contrainte hydrostatique, en fonction de la distance à partir de la pointe de la fissure.

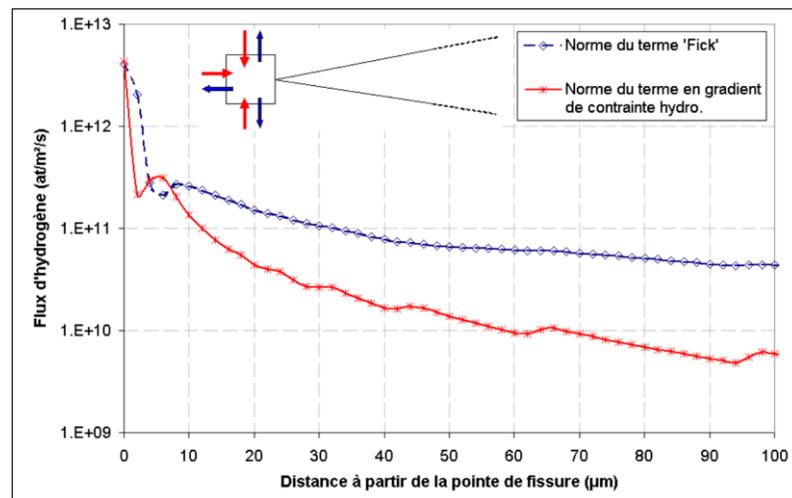


Figure 5 - 12 : Evolution de deux termes du flux d'hydrogène, qui représentent la diffusion contrôlée par la loi de Fick et celle contrôlée par la contrainte hydrostatique, en fonction de la distance à partir de la pointe de la fissure

Proche de la pointe de la fissure, les deux termes de diffusion sont du même ordre. Par conséquent, la loi de Fick n'est pas suffisante pour décrire la diffusion en pointe de fissure, mais il faut prendre en compte la contribution de la contrainte hydrostatique.

### Chargement monotone

Moriconi a étudié la capacité du modèle construit à prédire la propagation des fissures sous chargement monotone dans un acier soumis à de l'hydrogène gazeux à haute pression, pour plusieurs vitesses de chargement. Pour ce faire, les courbes R-CTOD et les profils de taux de recouvrement ont été simulés et comparés pour une loi de Fick et pour le modèle de diffusion couplée de Krom *et al.* [55]. La Figure 5 - 13 présente les résultats des courbes R-CTOD. Ces courbes relient l'évolution de  $\delta_5$  (ouverture entre deux points situés à 2.5mm de part et d'autre de la pointe de la fissure initiale dans l'éprouvette CT) et l'avancée de la fissure  $\Delta a$ .

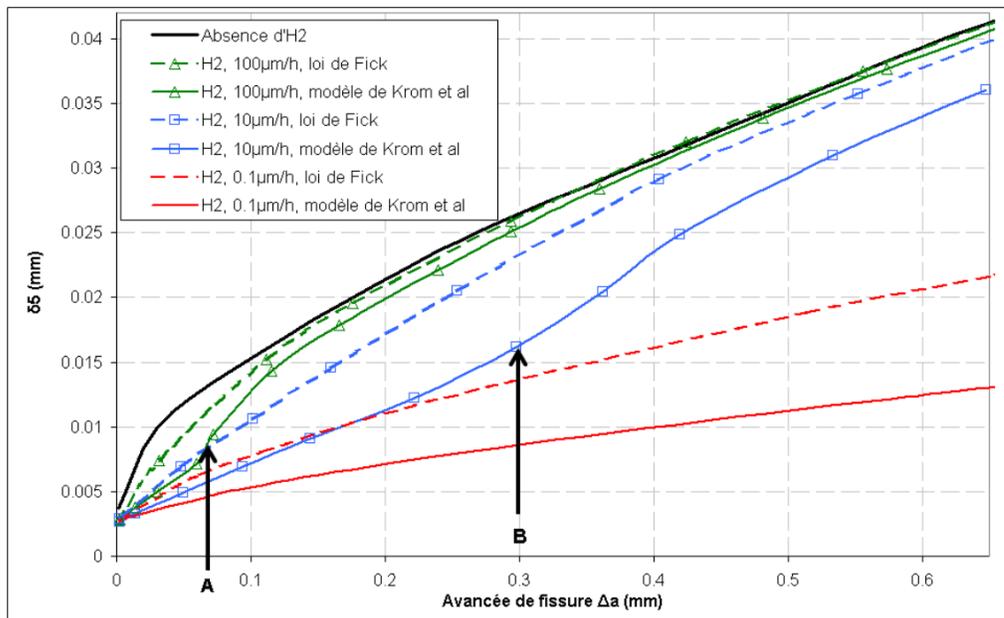


Figure 5 - 13 : Courbes R-CTOD simulées en l'absence d'hydrogène et sous hydrogène gazeux à 100 bar, pour différentes vitesses de chargement, en utilisant une loi de Fick ou le modèle de diffusion couplée de Krom

Les contributions des populations d'hydrogène diffusible et piégé ont été étudiées pour trois vitesses de chargement. Les résultats montrent que le modèle construit est capable de représenter au moins qualitativement l'influence néfaste de l'hydrogène sur la résistance à la fissuration sous chargement monotone. En plus, il est montré que l'utilisation du modèle de diffusion couplée de l'hydrogène a tendance à accentuer l'effet de l'hydrogène. L'étude des profils du taux de recouvrement  $\theta$  a montré que la contribution du piégeage de l'hydrogène est non négligeable pour les vitesses de chargement les plus élevées.

Après une série de simulations, on peut conclure que le modèle de zone cohésive, muni de la loi de traction-séparation influencée par l'hydrogène, est capable de représenter le mécanisme HEDE sous chargement monotone.

### Chargement cyclique

Les deux études précédentes ont montré que le modèle donne des résultats cohérents avec la littérature. L'objectif de cette section est d'étudier l'aptitude du modèle à prédire la propagation des fissures sous chargement cyclique en l'absence d'hydrogène dans l'acier 15-5PH. Dans ce cas, c'est l'évolution de la variable d'endommagement cyclique  $D_c$  des éléments cohésifs en fond de fissure qui pilote l'avancement de la fissure. Les paramètres ont été déterminés à partir d'un unique couple ( $\Delta K$ ,  $da/dN$ ) à  $R = 0.7$ , relevé expérimentalement à l'air.

Les vitesses de propagation ont été déterminées pour chaque valeur de  $\Delta K$  testée et pour deux rapports de charge différents ( $R = 0.1$  et  $0.7$ ), à partir des courbes donnant l'évolution de la longueur de fissure en fonction du nombre de cycles. La Figure 5 - 14 présente les résultats numériques comparés aux courbes expérimentales.

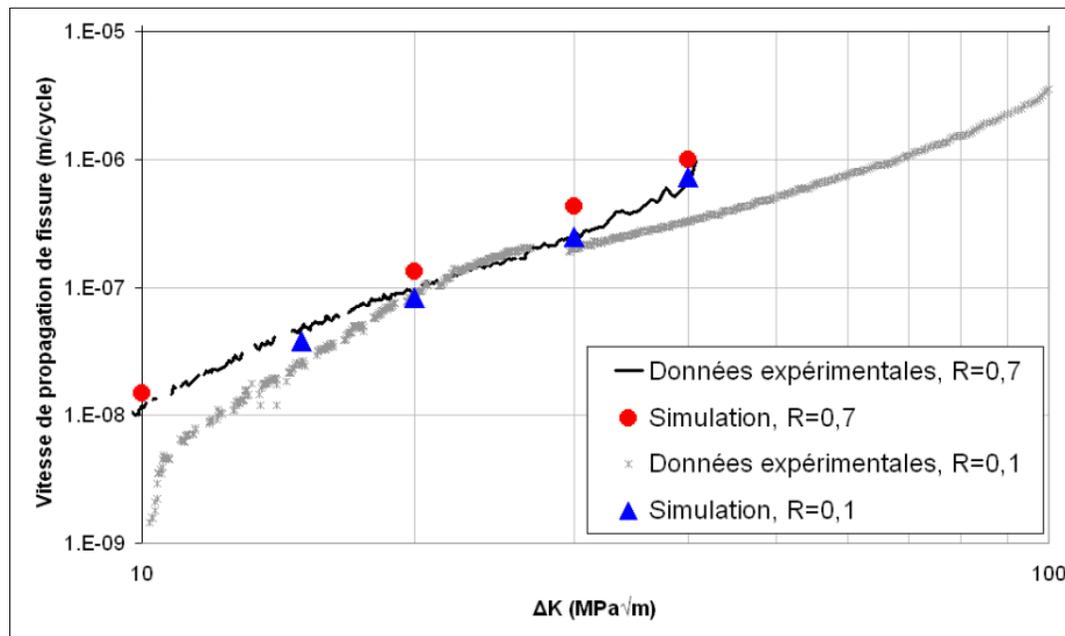


Figure 5 - 14 : Courbes expérimentales de propagation de fissures de fatigue dans l'acier 15-5PH, et résultats des simulations

On observe que le modèle construit est capable de prédire une augmentation régulière des vitesses de propagation avec la valeur de  $\Delta K$ , ainsi que l'exposant de Paris de la courbe de propagation expérimentale sous air. On observe que le rapport de charge n'a que peu d'influence sur les vitesses de propagation, ce qui est cohérent avec la construction du modèle.

### 5.3.2 Propagation de fissures de fatigue assistée par l'hydrogène gazeux

Cette partie présente les simulations réalisées par C. Moriconi de la propagation des fissures de fatigue dans l'acier inoxydable martensitique 15-5PH en atmosphère d'hydrogène gazeux.

Le modèle simule une augmentation des vitesses de propagation d'un rapport 2.5 indépendamment de la pression d'hydrogène entre 0.09 et 9 MPa, pour des niveaux des  $\Delta K$  de 10 à 20 MPa x m<sup>1/2</sup> (Figure 5 - 15).

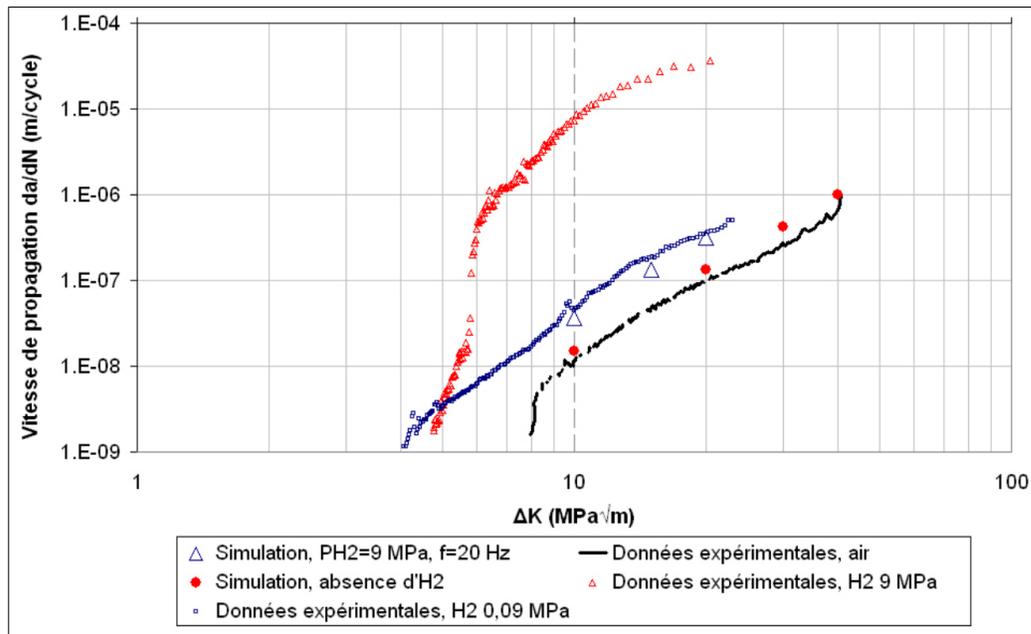


Figure 5 - 15 : Vitesses de propagation des fissures de fatigue dans l'acier inoxydable martensitique 15-5PH : courbes expérimentales et résultats des simulations sous air et sous atmosphère d'hydrogène gazeux

Ces observations sont cohérentes avec l'effet de l'hydrogène à faible pression (0.09 MPa) sur les vitesses de propagation expérimentales, mais ne permettent pas de rendre compte de la perte drastique de résistance à la fissuration observée à plus haute pression.

L'influence de la pression sur la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure a été analysée, en fonction de la concentration d'hydrogène utilisée dans le calcul, interstitielle  $C_L$  ou totale  $C$  (Figure 5 - 16a). Ensuite, il a été observé qu'à haute fréquence de chargement cyclique (20 Hz), et pour différents niveaux de  $\Delta K$  (10, 15 et 20 MPa x m<sup>1/2</sup>) et de pression (0,09 et 9 MPa d'H<sub>2</sub>), l'hydrogène n'a le temps de diffuser par les sites interstitiels que sur une distance d'environ 2 à 4 μm en pointe de fissure (Figure 5 - 16b). Pour une fréquence de chargement 100 fois plus faible (0.2 Hz), l'hydrogène affecte une zone d'environ 10 μm le long du trajet de fissure (Figure 5 - 16c), ce qui laisse supposer des vitesses de propagation plus élevées à faible fréquence.

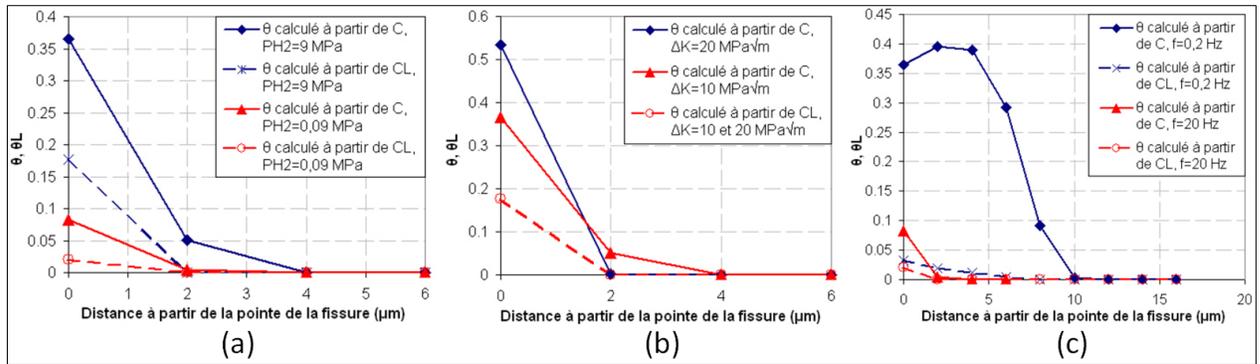


Figure 5 - 16 : Diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure : influence de la pression (a), du  $\Delta K$  (b) et de la fréquence de chargement (c)

## 5.4 Conclusion

Les essais expérimentaux montrent l'effet néfaste de l'hydrogène gazeux sur la résistance à la fissuration en fatigue d'un acier inoxydable martensitique 15-5PH. L'effet aggravant de l'augmentation de la pression d'hydrogène, de l'augmentation du niveau de  $\Delta K$  et d'une baisse de la fréquence de chargement sur la résistance à la propagation de l'acier 15-5PH met en évidence la nécessité de disposer d'un outil permettant d'analyser la compétition entre les cinétiques de propagation des fissures sous chargement cyclique et de diffusion de l'hydrogène en fond de fissure.

Le modèle construit pour décrire ces phénomènes utilise une approche de zone cohésive, avec une loi de traction-séparation spécifique, utilisée pour décrire l'endommagement progressif du matériau sous chargement cyclique. En outre, l'énergie de séparation est réduite en présence d'hydrogène, à travers l'influence du taux de recouvrement en hydrogène sur les paramètres de la TSL, ce qui est cohérent avec le mécanisme HEDE.

Les résultats numériques ont montré que le MZC avec la TSL développée permet de prédire qualitativement l'influence néfaste de l'hydrogène sur la propagation de fissures en chargement statique, monotone et cyclique, ce qui valide l'implémentation du mécanisme HEDE. Une augmentation des vitesses de propagation, d'un rapport 2,5 par rapport à l'absence d'hydrogène et indépendante de la pression d'hydrogène entre 0.09 et 9 MPa, a été observée pour des niveaux de  $\Delta K$  de 10 à 20 MPa  $\times$  m<sup>1/2</sup>. Ces observations sont cohérentes avec l'effet de l'hydrogène à faible pression (0.09 MPa) sur les vitesses de propagation expérimentales. Par contre, le modèle ne peut pas prédire les vitesses de propagation de fissure très élevées relevées expérimentalement pour des niveaux de  $\Delta K$  supérieurs à 6 MPa  $\times$  m<sup>1/2</sup> pour une pression de 9 MPa d'hydrogène.

L'impossibilité de prédire l'augmentation brutale des vitesses de propagation observée expérimentalement indique que les ingrédients du modèle ne sont pas suffisants pour décrire le phénomène réel, ce qui appuie l'idée de l'existence d'autres mécanismes de transport de l'hydrogène. La modélisation à une échelle plus fine de la théorie HELP, couplée avec le

transport de l'hydrogène par les dislocations mobiles par exemple, pourrait permettre d'étudier les distances de pénétration de l'hydrogène par ce phénomène.

Le modèle développé par Moriconi présente des problèmes de convergence dans certaines conditions de chargement, qui empêchent la réalisation d'une série complète (et cohérente) de simulations sur une grande gamme de  $\Delta K$ . Dans cette étude nous avons essayé d'identifier l'origine des problèmes de convergence, et de les résoudre, ou de trouver le jeu de paramètres qui permet la convergence. Ces paramètres peuvent être très différents, par exemple les paramètres de la TSL, ou le temps d'incrément, la régularisation visqueuse, la forme du signal, etc. Ces points seront abordés dans le Chapitre 7. L'étude portera tout d'abord sur l'analyse du modèle, en essayant d'identifier le maillage et les conditions permettant de réaliser une série complète de simulations. Ensuite, on analysera l'influence d'autres paramètres sur les vitesses de propagation, tels que l'énergie libre  $\Delta g_b^0$ , le temps d'incrément, le coefficient de diffusion, etc. Moriconi a étudié principalement l'influence de la pression d'hydrogène, entre 0.09 et 9 MPa, sur les vitesses de propagation. Au vu des nouveaux résultats expérimentaux, et avec les modifications apportées au modèle, nous allons réaliser une série de simulations dans un intervalle plus grand de pressions, mais aussi pour des fréquences de chargement et un intervalle de  $\Delta K$  plus large.

Ensuite, au vu des résultats expérimentaux sur la déformation plastique hors plan en pointe de fissure (décrits dans le chapitre 6), nous proposerons une modification du modèle en ajoutant un endommagement des éléments de bulk en présence d'hydrogène, afin de se rapprocher des observations expérimentales. La modification des paramètres mécaniques du matériau, qui nous permet d'améliorer la réponse du modèle, représente le mécanisme HELP et/ou AIDE. Ainsi, le modèle nous aidera à comprendre la modification du comportement mécanique du matériau en présence d'hydrogène. L'étude de la contribution des deux composantes de diffusion de la loi de Krom permettra de représenter l'effet d'une accumulation d'hydrogène en pointe de fissure. L'augmentation de la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure peut être due, par exemple, au transport par les dislocations mobiles.

Moriconi a montré que le modèle représente correctement la fissuration en environnement inerte. Le perfectionnement de la réduction de l'énergie de rupture en présence d'hydrogène (HEDE), et l'introduction de l'effet de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques du matériau, et en particulier sur la limite d'élasticité, et de la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure (qui représente le mécanisme HELP et/ou AIDE), pourra permettre, d'un point de vue numérique, la simulation correcte des vitesses de propagation et de la déformation plastique autour d'une fissure dans un système complexe, et d'un point de vue scientifique, une meilleure compréhension du phénomène de la fissuration assistée par l'hydrogène, notamment dans le 15-5PH.

## Chapitre 6

# Essais de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux

Ce chapitre présente les résultats de la campagne expérimentale de fissuration sous hydrogène gazeux, réalisée sur l'acier inoxydable martensitique 15-5PH, durci par précipitation, très sensible à la fragilisation par hydrogène [197]. Ces résultats seront ensuite utilisés pour la comparaison et le développement du modèle de zone cohésive présenté dans le chapitre précédent. De plus, ces résultats seront comparés à ceux sur le fer pur dans la dernière partie du manuscrit, afin de dégager des conclusions générales sur le phénomène de fissuration assistée par l'hydrogène gazeux dans les métaux.

### 6.1 Matériau et méthodes expérimentales

#### 6.1.1 Caractéristiques générales

L'acier utilisé dans cette étude est un acier commercial 15-5PH, connu sous le nom EN10088/3(95) (numéro UNS S15500). Le choix de ce matériau pour des études préliminaires sur la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux est notamment basé sur le fait que le comportement de ce matériau a été déjà largement caractérisé dans des études antérieures menées au laboratoire [195].

La composition chimique est présentée dans le Tableau 6 - 1. Il s'agit d'un acier inoxydable à base de chrome-nickel-cuivre, durci par précipitation. Le traitement thermique, désigné par H1025, consiste en un maintien de quatre heures à une température de 551°C (1025°F) suivi d'une trempe rapide à l'aide d'un jet d'air froid. Il en résulte une microstructure martensitique, qui combine de bonnes propriétés mécaniques et une bonne résistance à la corrosion. Par contre, comme montré par Murray [197], l'acier 15-5PH, dans cet état métallurgique, est particulièrement sensible à la FPH. Ce matériau a été donc choisi, afin de mettre en évidence l'effet de l'hydrogène gazeux sur la tenue en fatigue et sur les surfaces de rupture.

Composition chimique, %						
Cr	Ni	Cu	C	Mn	Si	Nb + Ta
14 à 15.5	3.5 à 5.5	2.5 à 4.5	< 0.07	< 1	< 1	0.15 à 0.45

Tableau 6 - 1 : Composition chimique de l'acier 15-5PH

Hamon [195] a caractérisé le comportement élastoplastique cyclique du 15-5PH, afin d'identifier une loi de comportement à utiliser dans des simulations. D'après l'auteur, l'utilisation d'une loi d'érouissage cinématique non-linéaire est la plus appropriée pour décrire le comportement du matériau. Des essais de traction-compression cyclique ont permis d'identifier les paramètres de la loi élastoplastique (module de Young  $E$ , limite d'élasticité  $\sigma_y$ , coefficient de Poisson  $\nu$ , et paramètres de l'érouissage cinématique non-linéaire  $C$  et  $\gamma$ ). Les valeurs identifiées sont reportées dans le Tableau 6 - 2.

Paramètre	Valeur
$E$	200 000 MPa
$\sigma_y$	750 MPa
$\nu$	0.3
$C$	270 000 MPa
$\gamma$	600

Tableau 6 - 2 : Paramètres de la loi de comportement de l'acier 15-5PH

## 6.1.2 Principes des essais de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène

Pour les essais de propagation de fissures de fatigue, nous avons utilisé des éprouvettes Compact Tension CT40, avec la même géométrie que celles utilisées pour l'analyse sur le fer pur, présentée dans le paragraphe 3.1. La procédure expérimentale à suivre pour le déroulement correct d'un essai de fissuration est aussi présentée dans le paragraphe 3.1, en se basant sur les principes de la norme ASTM E647 [124].

Les éprouvettes CT sont prélevées dans le sens longitudinal-transversal (LT, voir la Figure 3 - 2), dans une plaque laminée d'épaisseur 30 mm. Hamon [195] a montré que le sens de prélèvement n'a pas d'influence sur les vitesses de propagation de fissures dans ce matériau.

La préparation des éprouvettes (mesures, états de surface et pré-fissuration) n'évolue pas par rapport aux essais sur le fer pur, présentée dans le paragraphe 3.1. Les techniques de suivi de fissure utilisées lors de cette étude sont la méthode optique, au moyen d'un microscope optique longue distance placé en face de l'éprouvette (Questar), et la méthode de la chute de potentiel, qui consiste à faire passer un courant électrique dans l'éprouvette et mesurer la variation de différence de potentiel lors de l'avancement de la fissure. Ces techniques sont présentées plus en détail dans le paragraphe 3.1.3.

Les essais sont réalisés sur le banc d'essai Hycomat, présenté dans le paragraphe 3.1.2, qui permet la réalisation d'essais de fatigue sous une pression d'hydrogène jusqu'à 40 MPa. Les essais de fatigue ont été réalisés avec une forme de signal sinusoïdale à un rapport de charge  $R = 0.7$  (afin d'éviter les phénomènes de fermeture). L'observation des surfaces de rupture au MEB permet d'identifier qualitativement le changement des mécanismes de rupture sous hydrogène.

Le prochain paragraphe présente les premiers résultats sur la fissuration du 15-5PH, acquis avant le début des présents travaux de thèse. Ensuite, nous allons présenter les résultats acquis dans le cadre de cette étude.

### 6.1.3 Bilan des résultats précédents

Sun *et al.* [69] ont réalisé les premiers essais sous hydrogène gazeux sur l'acier 15-5PH, sur le banc d'essai Hycomat. Deux valeurs de la pression d'hydrogène gazeux ont été considérées: 0.09 MPa et 9 MPa. Les essais ont été réalisés sous contrôle de charge, c'est-à-dire à  $\Delta P$  constant, donc  $\Delta K$  croissant, à rapport de charge  $R = 0.7$ , et à une fréquence de chargement cyclique de 20 Hz. Les essais ont été menés à température ambiante.

L'influence de la pression d'hydrogène gazeux sur les vitesses de propagation de fissures de fatigue ( $da/dN$ ) en fonction de  $\Delta K$  est présentée en Figure 6 - 1, ainsi que les résultats obtenus sous air dans les directions LT et TL. Comme évoqué précédemment, la différence de vitesses de propagation de fissures entre les deux directions en termes est négligeable.

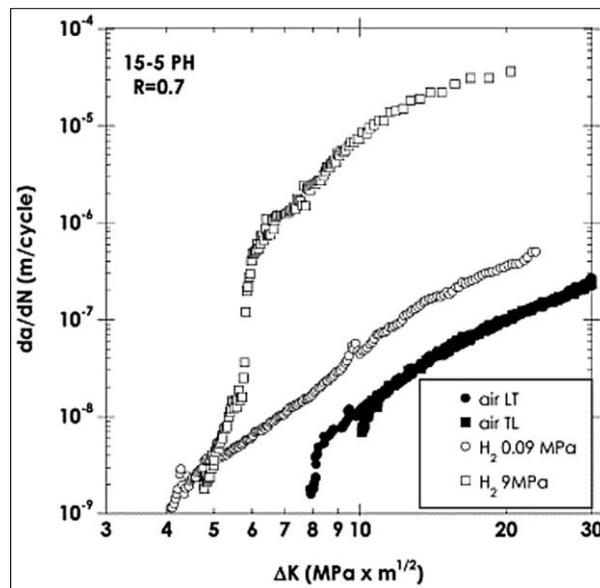


Figure 6 - 1 : Vitesses de propagation de fissures de fatigue sous air, dans les directions de prélèvement LT et TL, et sous 0.09 MPa et 9 MPa d'hydrogène [69]

Sous faible pression d'hydrogène (0.09 MPa), on remarque une faible augmentation des vitesses de propagation par rapport à l'air (d'un facteur 4 en moyenne), et ce dans tout l'intervalle de  $\Delta K$  étudié. Les pentes des deux courbes sont du même ordre, ce qui suggère que la présence d'une faible pression d'hydrogène ne modifie pas fondamentalement le mode de rupture. Sous une pression d'hydrogène élevée (9 MPa), les vitesses de propagation sont similaires à celles observées sous faible pression à faible  $\Delta K$  ( $< 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Ensuite, la courbe de propagation montre un régime transitoire, dans lequel les vitesses augmentent rapidement. Enfin, à partir de  $\Delta K = 7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , la courbe se stabilise avec une pente similaire à celle observée sous air et sous faible pression d'hydrogène, avec des vitesses de deux ordres de grandeur plus élevées.

La Figure 6 - 2 montre les fractographies obtenues pour les essais réalisés sous air et sous 0.09 MPa et 9 MPa d'hydrogène gazeux. L'observation des surfaces de rupture confirme les suppositions faites sur la base de l'observation des vitesses de propagation.

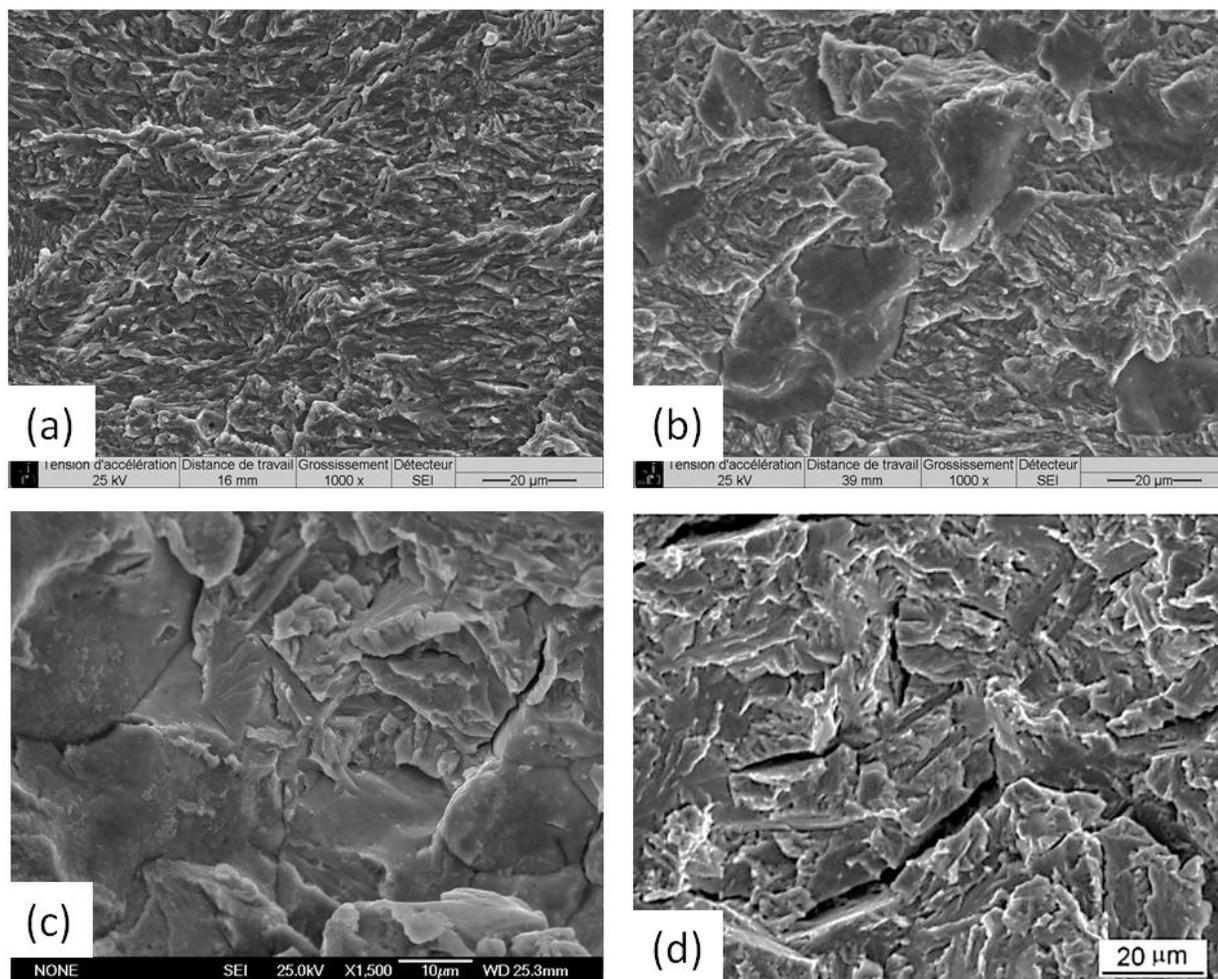


Figure 6 - 2 : Surfaces de rupture des éprouvettes testées sous différentes atmosphères : air ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (a), 0.09 MPa d'hydrogène ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (b), 9 MPa d'hydrogène avant la transition de vitesses de propagation ( $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (c), et 9 MPa d'hydrogène après cette transition ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) (d)

En effet, la morphologie des surfaces de rupture de l'essai sous faible pression d'hydrogène (0.09 MPa en Figure 6 - 2b) est similaire à celle des essais sous air, dans tout l'intervalle de  $\Delta K$  analysé. La rupture se fait principalement par quasi-clivage, même si dans l'essai sous hydrogène quelques facettes intergranulaires sont présentes. Sous 9 MPa d'hydrogène, les surfaces de rupture montrent un aspect très différent, plus fragile. En particulier, à faible valeur de  $\Delta K$ , la rupture est principalement intergranulaire, avec quelques fissures secondaires ( $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  en Figure 6 - 2c). Par contre, pour des valeurs de  $\Delta K$  élevées, c'est-à-dire après la transition des vitesses de propagation, le mode de rupture est transgranulaire fragile, avec de nombreuses fissures secondaires ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  en Figure 6 - 2d).

Si ces résultats mettent en évidence un effet de la pression d'hydrogène sur les vitesses de propagation de l'acier 15-5PH, ils ne permettent pas de caractériser pleinement l'influence de pressions intermédiaires et/ou plus élevées. Un des buts est notamment d'identifier une possible saturation de l'effet, comme observé sur le fer pur, en lien avec la fréquence de chargement cyclique (en particulier d'une fréquence de 10 à 100 fois plus faible). D'autres objectifs concernent l'influence de la fréquence de chargement cyclique, de 0.2 à 20 Hz, et la fissuration sous chargement statique à ces mêmes pressions. Ces résultats seront confrontés aux prédictions du modèle de zone cohésive présenté dans le chapitre 5, et utilisés pour son développement. De plus, la caractérisation de l'effet de l'hydrogène sur la déformation plastique en pointe de fissure sera analysée, afin d'obtenir des informations qualitatives et quantitatives sur la modification du comportement élastoplastique du matériau soumis à l'hydrogène gazeux.

## **6.2 Etude de la propagation de fissures dans le 15-5PH sous différentes atmosphères**

Cette partie présente les résultats de la campagne expérimentale. Nous présentons tout d'abord les courbes de référence, obtenues sous air, sous vide et sous azote. Ensuite, les mesures et les observations expérimentales sous hydrogène sont présentées, en analysant l'influence de la pression d'hydrogène, de la fréquence de chargement cyclique, et du niveau de  $\Delta K$ , sur les vitesses de propagation et sur les surfaces de rupture. Enfin, nous présentons les résultats des essais de fissuration sous chargement statique, réalisés sous 9 MPa d'hydrogène.

### **6.2.1 Propagation de fissures de fatigue dans le 15-5PH : courbes de référence**

A l'image de l'étude sur le fer pur, nous avons tout d'abord établi les courbes de référence sous environnement inerte ou modérément actif. En disposant déjà des courbes et des observations des surfaces de rupture sous air (Figure 6 - 1), un essai sous vide et un essai sous haute pression d'azote ont été réalisés.

L'essai de fissuration sous vide a été réalisé sur une machine hydraulique Instron 8800 (pression  $5 \times 10^{-6}$  mbar). L'essai sous azote a quant à lui été réalisé sur le banc Hycomat, sous une pression de 9 MPa. Ce dernier essai, en particulier, a été réalisé à partir d'une valeur de  $\Delta K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , afin d'obtenir une courbe de référence pour les faibles valeurs de  $\Delta K$  sous hydrogène. Ces essais ont été réalisés à une fréquence de 20 Hz et un rapport de charge  $R = 0.7$ , à température ambiante. La Figure 6 - 3 montre les courbes de propagation sous vide et sous azote, comparées à la courbe sous air.

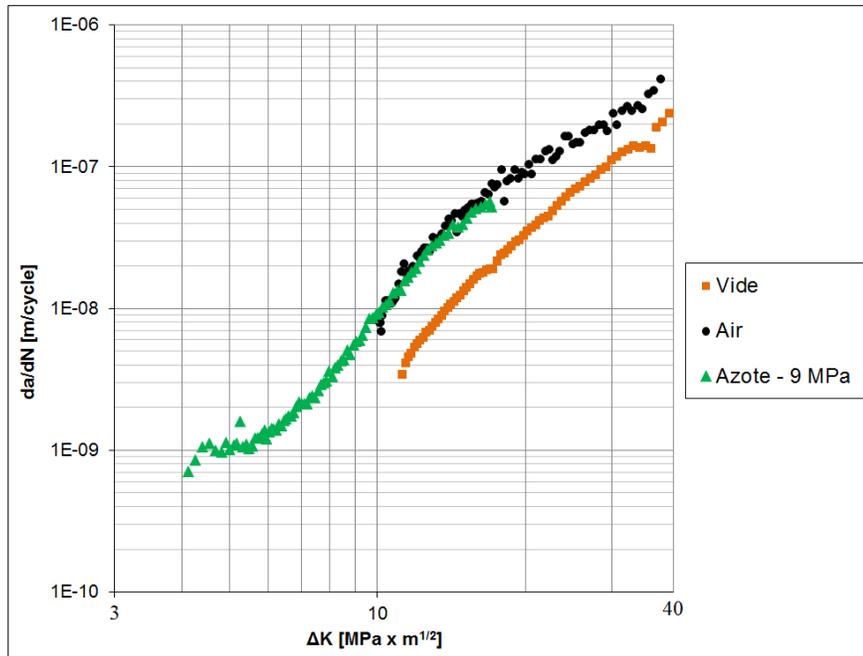


Figure 6 - 3 : Comparaison des vitesses de propagation de fissures sous vide et sous azote avec les vitesses sous air pour l'acier 15-5PH

On observe une augmentation des vitesses de propagation à l'air et sous azote d'un facteur environ 3 par rapport à l'essai sous vide. Les pentes des courbes de fissuration sont proches, ce qui amène à supposer que l'action de l'oxygène et de la vapeur d'eau ne change pas fondamentalement les mécanismes de fissuration. Comme montré pour le fer pur dans le paragraphe 3.2, et reporté dans la littérature [129,132], les vitesses de propagation à l'air et sous azote sont plus élevées par rapport à l'essai sous vide. Il est à noter que sous azote les vitesses de propagation se superposent parfaitement aux vitesses sous air dans l'intervalle de  $\Delta K$  en commun. Ceci est probablement dû à la vapeur d'eau résiduelle dans l'atmosphère d'azote (environ 25 ppm, mesuré avec un spectromètre de masse, Tableau 3.1), qui est suffisante pour causer la même augmentation des vitesses de propagation observé à l'air [198].

La Figure 6 - 4 montre les surfaces de rupture observées pour les éprouvettes testées sous vide (a) et sous 9 MPa d'azote (b), à  $\Delta K = 12 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . On peut les comparer avec celles de l'éprouvette sous air (Figure 6 - 2a). La direction de propagation de la fissure est de la gauche vers la droite (cette convention sera conservée pour toutes les fractographies).

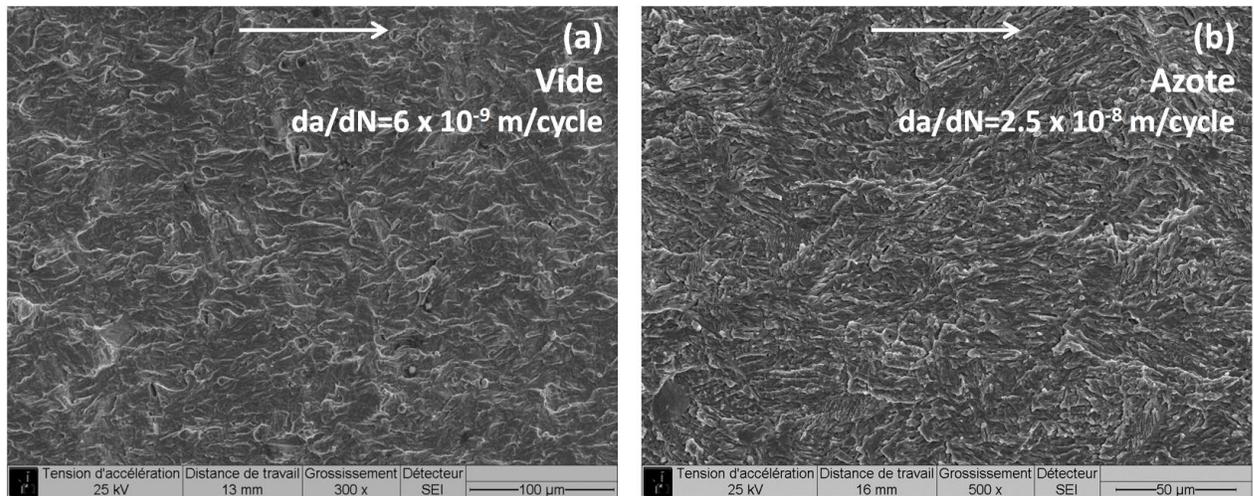


Figure 6 - 4 : Surfaces de rupture observées pour les éprouvettes testées sous vide (a) et sous 9 MPa d'azote (b), pour une valeur de  $\Delta K = 12 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$

On remarque peu de différence entre les modes de rupture pour les essais à l'air, sous vide et sous azote, comme on pouvait s'y attendre sur la base des courbes de propagation. En effet, la morphologie est similaire, et les surfaces montrent un mode de rupture transgranulaire relativement ductile. La rupture se fait par quasi-clivage, avec un motif de marquage des surfaces suivant la direction globale de propagation de la fissure.

Pour conclure, ces observations montrent que sous environnement inerte ou faiblement agressif (azote ou air) la propagation se fait essentiellement par quasi-clivage transgranulaire. L'influence de la vapeur d'eau est évidente sur les vitesses de propagation de fissures, mais les mécanismes de rupture restent inchangés.

## 6.2.2 Effet de la pression d'hydrogène gazeux sur la propagation d'une fissure de fatigue

Afin d'étudier la sensibilité de l'acier 15-5PH à la fissuration assistée par l'hydrogène, nous avons réalisé des essais de propagation de fissure de fatigue sous différentes pressions d'hydrogène gazeux, de 0.09 MPa jusqu'à 40 MPa (capacité maximale de l'autoclave).

La Figure 6 - 5 montre les courbes de propagation de fissures de fatigue en fonction de la pression d'hydrogène gazeux, comparées aux résultats obtenus sous air et sous azote.

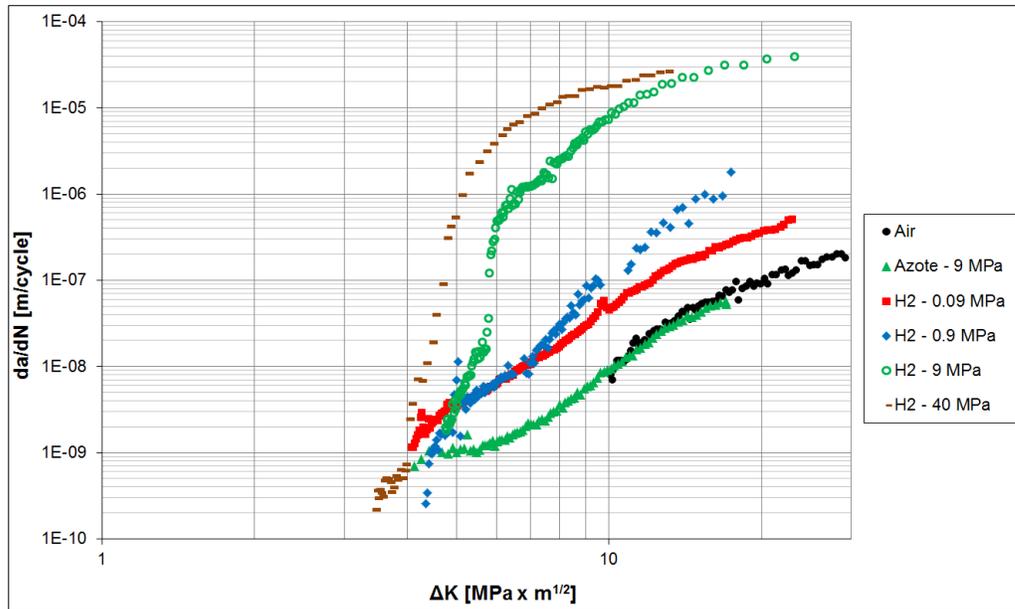


Figure 6 - 5 : Evolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue en fonction de la pression d'hydrogène gazeux, comparées aux résultats obtenus sous air et sous azote

L'essai réalisé sous 0.9 MPa d'hydrogène montre des vitesses de propagation légèrement plus élevées par rapport à l'essai sous azote. Ces vitesses sont en outre superposables à celles obtenues sous une pression de 0.09 MPa d'hydrogène jusqu'à environ  $\Delta K = 8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Ensuite, la pente de la courbe augmente légèrement, et les vitesses sont 3-4 fois plus élevées dans l'intervalle de  $\Delta K$  de 10 à 20  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Sous 40 MPa d'hydrogène, l'augmentation des vitesses de propagation est plus marquée que sous 9 MPa. Plus précisément, les vitesses sont similaires à celles mesurées sous faible pression jusqu'à  $\Delta K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Ensuite, on observe la transition des vitesses (dans l'intervalle de  $\Delta K$  de 4 à 5  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ), qui amène à des vitesses un ordre de grandeur plus élevées par rapport à l'essai sous 9 MPa. Enfin, les vitesses augmentent encore, mais la courbe converge sur celle à 9 MPa suggérant le début d'une saturation en régime établi. La forme générale des courbes de propagation est similaire à celle observée sur le fer Armco (Figure 3.19) à savoir un effet limité à faible valeur de  $\Delta K$  (zone 1 sur la Figure 3.19), une transition dans un intervalle étroit de  $\Delta K$  (zone 2), et enfin un régime établi de propagation fortement accéléré (zone 3). Nous analyserons plus en détail les similitudes et les différences entre les deux matériaux dans la dernière partie de ce manuscrit.

La Figure 6 - 6 montre les surfaces de rupture observées pour l'essai réalisé sous 0.9 MPa d'hydrogène, pour  $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (a), et  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b). A faible  $\Delta K$  (zone 1), où les vitesses sont similaires à celles observées à pression plus faible (0.09 MPa), les surfaces de rupture sont également similaires (Figure 6 - 2b), avec une rupture de type quasi-clivage, et la présence de quelques facettes intergranulaires. A  $\Delta K$  élevé (zone 3), on observe la disparition des facettes intergranulaires, à partir de  $\Delta K = 8 - 9 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  en relation avec une légère augmentation des vitesses de propagation.

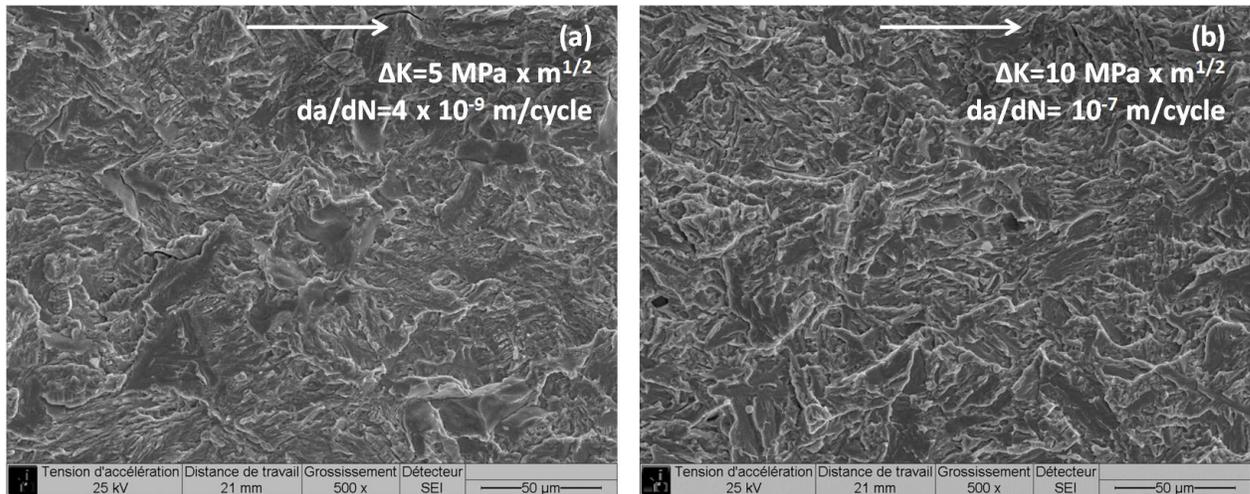


Figure 6 - 6 : Surfaces de rupture observées pour l'essai réalisé sous 0.9 MPa d'hydrogène, pour une valeur de  $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (a), et  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b)

La Figure 6 - 7 montre les surfaces de rupture observées pour l'essai réalisé sous 40 MPa d'hydrogène pour  $\Delta K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (zone 1, en Figure 6 - 7a), et de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (zone 3, Figure 6 - 7b).

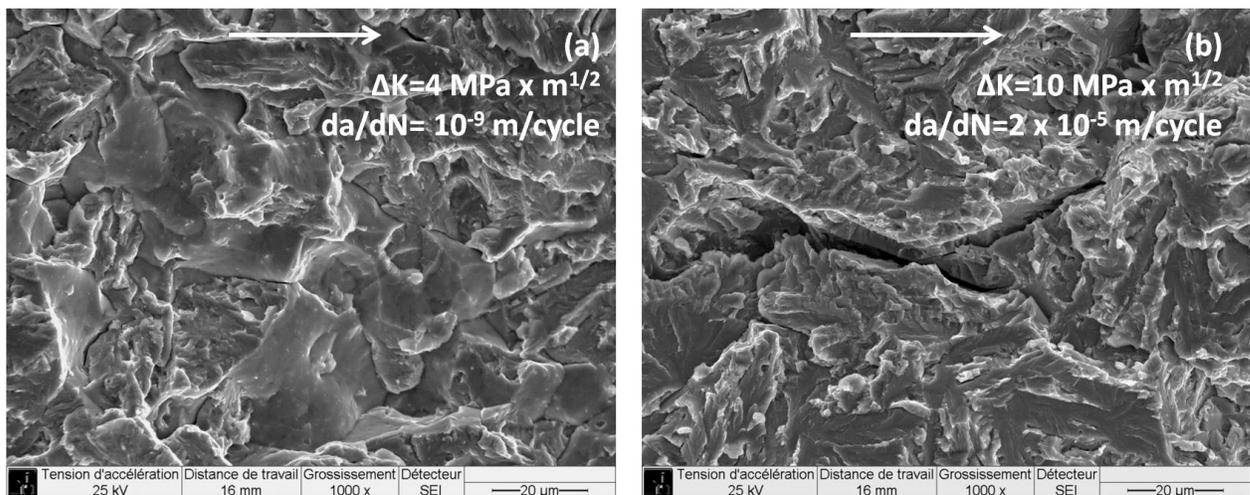


Figure 6 - 7 : Surfaces de rupture observées pour l'essai réalisé sous 40 MPa d'hydrogène, pour une valeur de  $\Delta K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (a), et  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b)

On peut comparer ces fractographies à celles obtenues pour l'essai sous 9 MPa d'hydrogène (Figure 6 - 2c et d). Les surfaces sont similaires, avec une propagation principalement intergranulaire avant et pendant la transition des vitesses (zones 1 et 2), suivies du régime accéléré (zone 3) dans lequel la propagation est complètement transgranulaire, et la rupture se fait par clivage fragile. La transition du mode de propagation prédominant, d'intergranulaire à transgranulaire, se produit à la fin du régime transitoire (fin de la zone 2), à  $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .

L'augmentation de la pression de 9 à 40 MPa cause un « décalage » de la courbe vers des valeurs de  $\Delta K$  plus faibles. La modification des surfaces de rupture suit la transition des vitesses de propagation (et non la valeur de  $\Delta K$ ), qui représente alors la frontière entre un mode de rupture intergranulaire et un mode transgranulaire, caractérisé par des vitesses très élevées qui tendent vers une saturation. Dans le futur, afin de compléter la base de données, des essais sous une pression élevée d'hydrogène pourront être réalisés à partir de fortes valeurs de  $\Delta K$  (10 - 12 MPa x m<sup>1/2</sup>). Ceci permettra de connaître l'évolution des courbes par rapport au début de saturation observé, et, en particulier, de montrer s'il existe une limite de vitesse de propagation pour cette fréquence de chargement cyclique. Dans le prochain paragraphe on analysera l'influence de la fréquence sur les vitesses de propagation, et on montrera, en particulier, que cette limite n'existe pas, ou elle est beaucoup plus élevée, pour des fréquences de sollicitation plus faibles.

### 6.2.3 Influence de la fréquence de chargement cyclique sur la propagation d'une fissure de fatigue sous hydrogène

Sur la base des résultats de l'essai sous une pression de 9 MPa d'hydrogène et une fréquence de 20 Hz, deux essais complémentaires ont été conduits à la même pression mais pour des fréquences plus faibles, à savoir 2 et 0.2 Hz. Les courbes de propagation de fissures sont présentées en Figure 6 - 8.

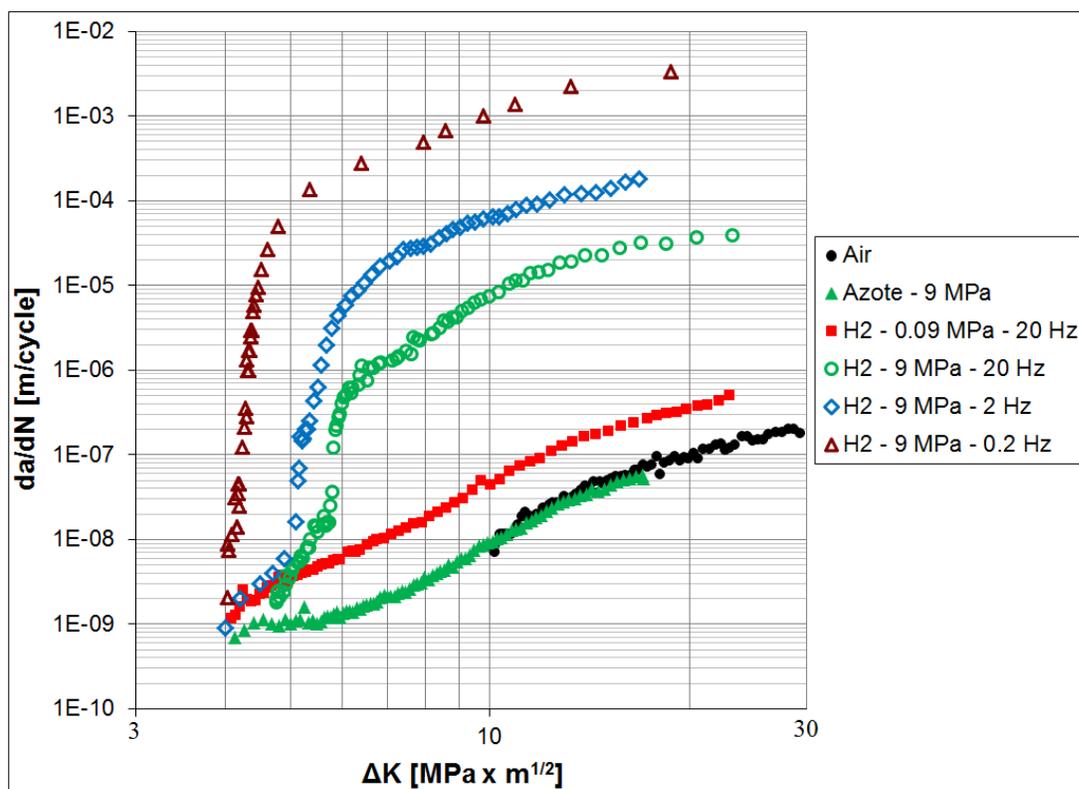


Figure 6 - 8 : Evolution des vitesses de propagation de fissures de fatigue en fonction de la fréquence de chargement cyclique sous 9 MPa d'hydrogène gazeux, comparées aux résultats obtenus sous air, sous azote et sous faible pression d'hydrogène, pour l'acier 15-5PH

Si l'on observe les trois courbes obtenues pour la pression de 9MPa, on remarque un comportement similaire, avec un effet de l'hydrogène plus prononcé au fur et à mesure que la fréquence baisse. Dans les trois cas on observe des vitesses de propagation initiales faibles, de l'ordre de  $10^{-9}$  m/cycle, proches des vitesses observées sous faible pression d'hydrogène, voire sous azote. A mesure que le  $\Delta K$  augmente, on observe une transition sur les trois courbes, qui opère dans un intervalle étroit de  $\Delta K$  (différent dans les trois cas), et qui amène à un régime de propagation stable, caractérisé par une pente similaire à celle observée sous faible pression, et des vitesses de trois à cinq ordres de grandeur plus élevées par rapport à celles mesurées sous air et sous azote. En baissant la fréquence, l'intervalle de transition est décalé vers des valeurs de  $\Delta K$  plus faibles, et les vitesses atteintes après transition sont plus élevées, respectivement d'un ordre de grandeur en réduisant la fréquence à 2 Hz, et de deux ordres de grandeur à 0.2 Hz. Cet effet est similaire à celui engendré par l'augmentation de la pression décrit dans le paragraphe précédent, ce qui sous-entend qu'en première analyse l'effet de l'hydrogène serait gouverné par l'exposition (c'est-à-dire le produit de la pression et du temps d'exposition i.e. la période du cycle). Toutefois on notera que les vitesses atteintes à  $\Delta K$  élevé et faible fréquence ne semblent pas, pour les conditions considérées, atteindre de régime saturant, à la différence de la propagation sous haute pression à 20 Hz (paragraphe précédent).

La Figure 6 - 9 montre les fractographies des deux essais conduits sous 9 MPa pour les fréquences de 2 Hz et 0.2 Hz, à comparer avec les fractographies de l'essai à 20 Hz en Figure 6 - 2c et d. Les observations ont été effectuées avant et après la transition des vitesses de propagation. On observe un comportement similaire pour les trois différentes fréquences étudiées. Ainsi, avant la transition, c'est-à-dire à faibles vitesses de propagation, la rupture est principalement intergranulaire, avec quelques fissures secondaires. Par contre, à  $\Delta K$  élevé, c'est-à-dire après la transition des vitesses de propagation, le mode de rupture est de type transgranulaire fragile, avec des nombreuses fissures secondaires. La principale différence réside dans le « décalage » de la transition du mode de rupture de intergranulaire à transgranulaire, transition qui se produit à environ  $\Delta K = 7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  à 20 et 2 Hz, et environ  $\Delta K = 6 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  à 0.2 Hz, à l'instar de ce qui est observé sur les vitesses.

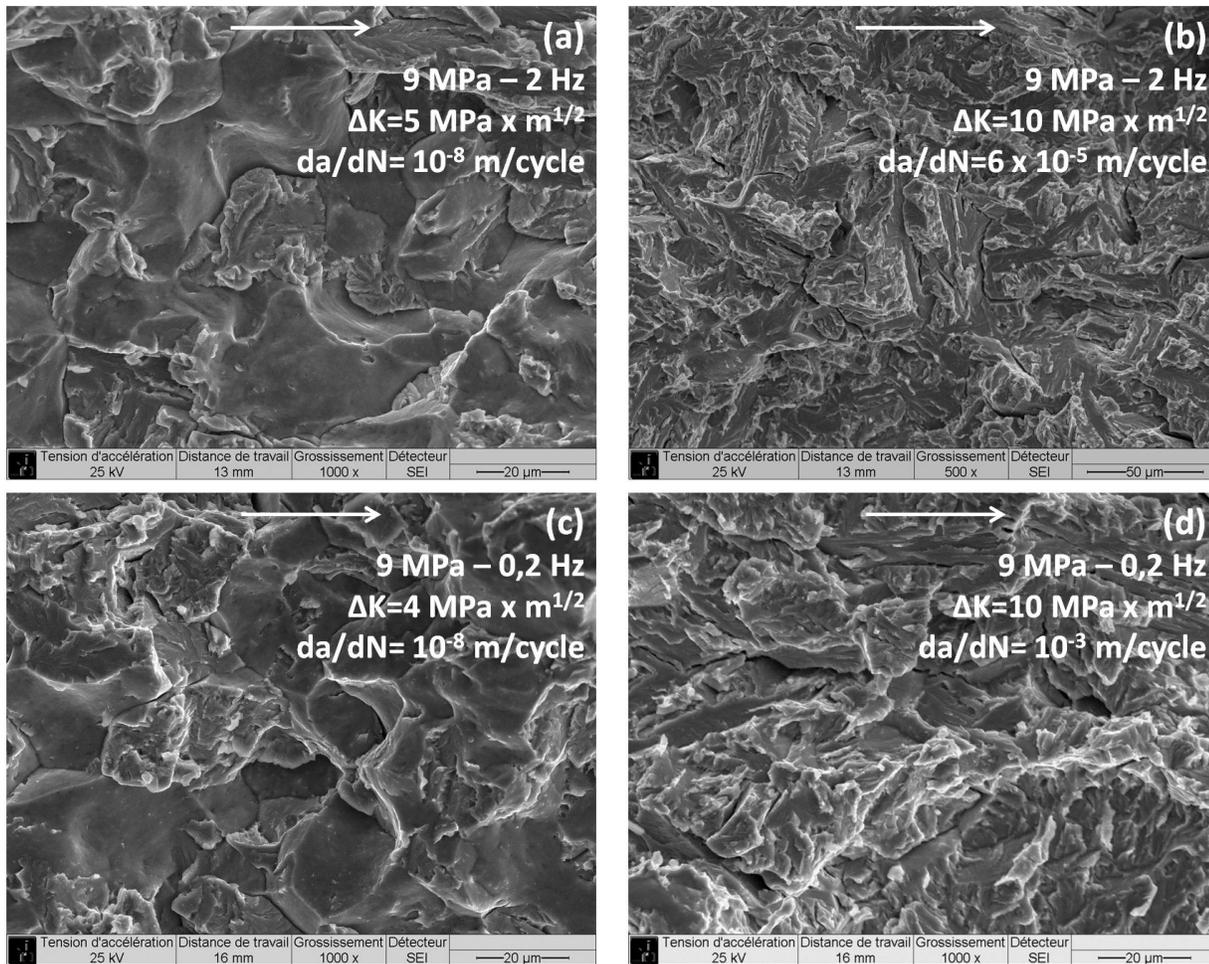


Figure 6 - 9 : Surfaces de rupture observées pour les essais réalisés sous 9 MPa d'hydrogène et les fréquences de chargement de 2 Hz et 0.2 Hz, pour une valeur de  $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (avant la transition des vitesses de propagation), et  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (après la transition)

Lors des essais à faible fréquence, plusieurs jours, voire semaines, s'avèrent nécessaires pour atteindre la transition des vitesses de propagation. Ceci a entre autres motivé le choix de réaliser les essais sous haute pression d'hydrogène, afin de s'assurer une transition des vitesses de propagation, et donc de réduire le temps d'essai. Dans le futur, on pourra réaliser des essais à plus faible pression (par exemple 0.09 MPa, pour laquelle on n'observe pas la transition des vitesses) et à fréquence de 2 et 0.2 Hz, afin de vérifier si l'effet d'une faible pression d'hydrogène peut être compensé par une plus longue exposition à l'hydrogène.

Par exemple, en observant la Figure 6 - 5, on remarque pour la pression de 0.9 MPa une légère augmentation des vitesses à partir de  $\Delta K = 8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . On peut alors supposer que, pour cette pression, le fait de réduire la fréquence d'un ordre de grandeur pourrait faire augmenter les vitesses d'un ordre de grandeur dans l'intervalle de  $\Delta K$  de 10 à 20  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , avec une transition autour de 8 et 10  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . La diminution de la fréquence d'un ordre de grandeur supplémentaire pourrait, via un taux d'exposition plus élevé, décaler la transition à des valeurs de  $\Delta K$  plus faibles, et faire encore augmenter les vitesses d'un ordre de grandeur, jusqu'à se rapprocher des vitesses observée à 9 MPa et 20 Hz.

## 6.2.4 Propagation de fissure de fatigue sous chargement statique

Des essais de fissuration sous chargement statique ont été réalisés sous 9 MPa d'hydrogène gazeux. Il s'agit plus précisément d'un essai mené à charge imposée et un essai en ouverture imposée. La procédure consiste, dans le premier cas, en une mise en charge à une valeur constante, qui correspond à la valeur de  $K$  désirée, et dans le second cas, en un déplacement du vérin jusqu'à une position qui donne, pour la longueur de fissure actuelle, une charge correspondant à la valeur de  $K$  désirée.

La valeur initiale du facteur d'intensité de contrainte  $K$  pour ces deux essais a été choisie dans l'intervalle 17-20 MPa x m<sup>1/2</sup>, c'est-à-dire proche de la valeur de  $K_{max}$  correspondante à  $\Delta K = 5-6$  MPa x m<sup>1/2</sup> pour un essai de fatigue à  $R = 0.7$ . En effet, c'est pour cette condition ( $K$ , pression), que l'on observe la transition de vitesses de propagation à 20 Hz. Le but ici est d'avoir une fissure qui n'avance pas trop rapidement dès l'application de la charge, tout en limitant la durée de l'essai. La Figure 6 - 10 montre les courbes de propagation des deux essais.

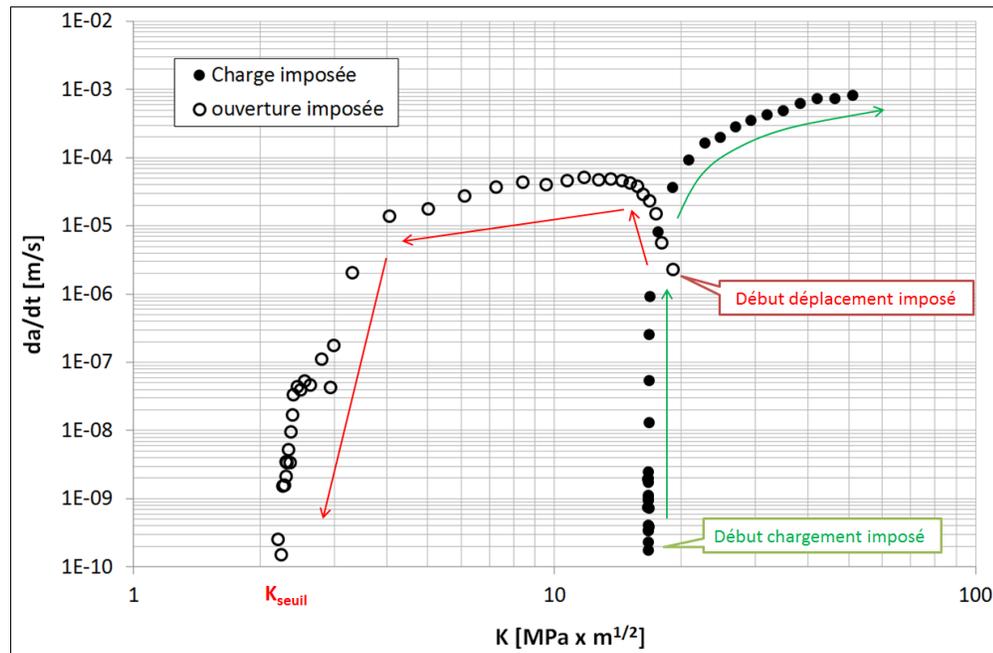
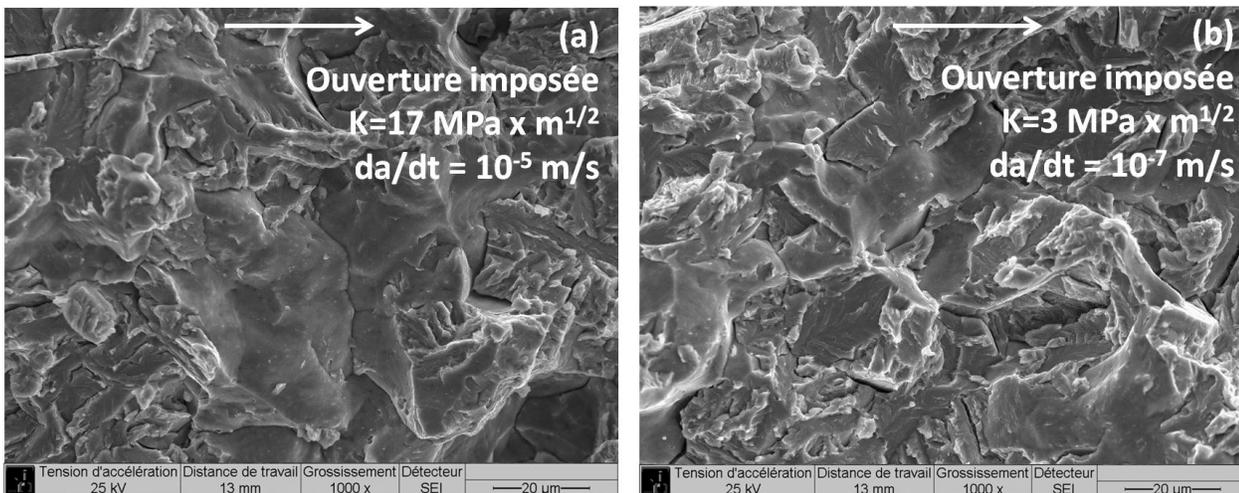


Figure 6 - 10 : Courbes de propagation de fissures sous 9 MPa d'hydrogène gazeux sous un chargement statique: charge imposée (●) et ouverture imposée (○)

Pour l'essai à charge imposée, commencé à  $K = 17$  MPa x m<sup>1/2</sup>, la fissure n'a pas avancé pendant environ trois jours (temps d'incubation), puis elle a commencé à progresser avec des vitesses  $da/dt$  très élevées, conduisant à la rupture en quelques dizaines de secondes. En ce qui concerne l'essai en ouverture imposée, étant donné la valeur initiale de  $K$  plus élevée (20 MPa x m<sup>1/2</sup>), le temps d'incubation est considérablement réduit. Après quelques minutes d'incubation, la fissure avance avec une vitesse qui augmente initialement, jusqu'à atteindre un maximum, puis diminue, d'abord doucement, jusqu'à environ  $K = 4$  MPa x m<sup>1/2</sup>, et ensuite plus rapidement, jusqu'à des vitesses très faibles près du seuil de propagation, à environ  $K = 2$  MPa x m<sup>1/2</sup>.

On peut distinguer une enveloppe commune aux deux courbes, traduisant un régime de propagation établi entre  $K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et  $K = 50 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  environ. Ce résultat suggère une possible explication pour la forme complexe des courbes de propagation de fissures de fatigue sous hydrogène, à savoir deux parties linéaires séparées par un transitoire. Il est possible dans ce cas, de considérer la propagation comme la superposition d'une composante de « fatigue pure », qui peut être observée dans un environnement inerte voire modérément agressif, et une deuxième composante statique, qui opère à partir d'une certaine valeur de  $K_{\text{max}}$ , et responsable d'une forte augmentation des vitesses de propagation après un certain temps d'incubation (qui dépend du  $K$  et de la pression d'hydrogène), et qui expliquerait alors la transition de vitesses observée expérimentalement.

La Figure 6 - 11 présente les surfaces de rupture produites lors des deux essais statiques. Les Figure 6 - 11a et b montrent une évolution limitée des modes de rupture lors de l'essai à ouverture imposée, avec la présence de quelques facettes intergranulaires dans une propagation majoritairement transgranulaire, facettes qui peuvent être observées tout au long de la surface de rupture (jusqu'à des vitesses très faibles pour  $K = 2 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Les Figure 6 - 11c et d montrent quant à elles l'évolution des surfaces de rupture pour l'essai réalisé à charge imposée. Les surfaces initiales, pour  $K$  de 16.7 à 22  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$  montrent quelques facettes intergranulaires alternées à des facettes de quasi-clivage. Par contre, pour des valeurs de  $K$  et de  $da/dt$  plus élevées, la propagation devient complètement transgranulaire, avec des fissures secondaires plus ouvertes et, en général, un aspect très fragile.



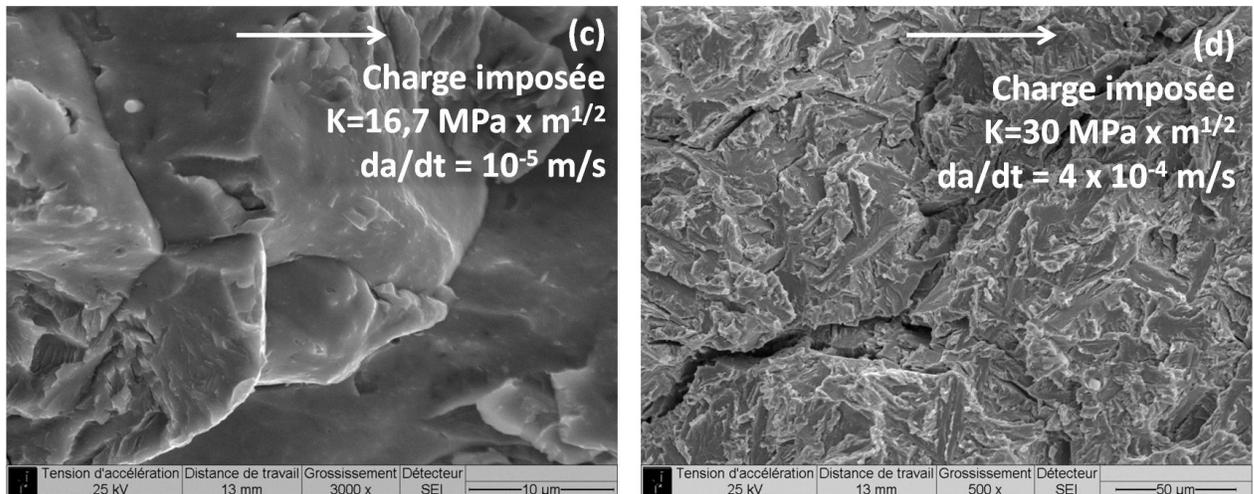


Figure 6 - 11 : Surfaces de rupture observées pour les essais statiques réalisés sous 9 MPa d'hydrogène en correspondance du  $K$  initial et loin du début de la propagation, pour l'essai en ouverture imposée (a et b), et de l'essai en charge imposée (c et d)

Ces résultats suggèrent que c'est principalement la valeur de  $K_{max}$  qui contrôle les vitesses de propagation et le changement de mode de rupture sous hydrogène quel que soit le type de chargement. En effet, sous 9 MPa d'hydrogène, lorsque la valeur de  $K$  (ou de  $K_{max}$  pour les cycles de fatigue) est faible, le mode de rupture présente des facettes intergranulaires. A partir d'une valeur de  $K$  d'environ  $22 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , ce qui correspond pour un chargement cyclique à  $R = 0.7$  à  $\Delta K = 6.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  environ, le mode de rupture est totalement transgranulaire. Dans ce cas, les vitesses de propagation sont toujours très élevées : que ce soit un chargement statique ou cyclique, on aboutit tout de suite sur le régime de propagation linéaire à très hautes vitesses. Dans le futur, des essais cycliques à de rapports de charge plus faibles pourraient confirmer ces affirmations. D'autres essais statiques pourront être réalisés sous une pression d'hydrogène différente, afin de montrer l'effet combiné de pression et temps d'exposition sur les vitesses de propagation et sur l'évolution du temps d'incubation en fonction de la valeur de  $\Delta K$ . Afin de compléter cette étude, un deuxième autoclave est en cours de réalisation. Il permettra la réalisation de longs essais à ouverture constante sous hydrogène gazeux, et, en plus, la réalisation de plusieurs essais en même temps. L'utilisation de cet autoclave permettra de ne pas impacter sur la machine Hycomat, qui peut être utilisée pour des chargements complexes.

## 6.2.5 Discussion

La campagne expérimentale présentée ici a confirmé l'effet néfaste de l'hydrogène gazeux sur la propagation de fissures pour l'acier 15-5PH et a permis de préciser le rôle de certains paramètres. La Figure 6 - 12 montre l'influence de la pression et de la fréquence de chargement cyclique sur les vitesses de propagation de fissure pour la valeur de  $\Delta K = 6.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , qui correspond à la valeur supérieure de la transition des vitesses de propagation pour toutes les conditions d'essai.

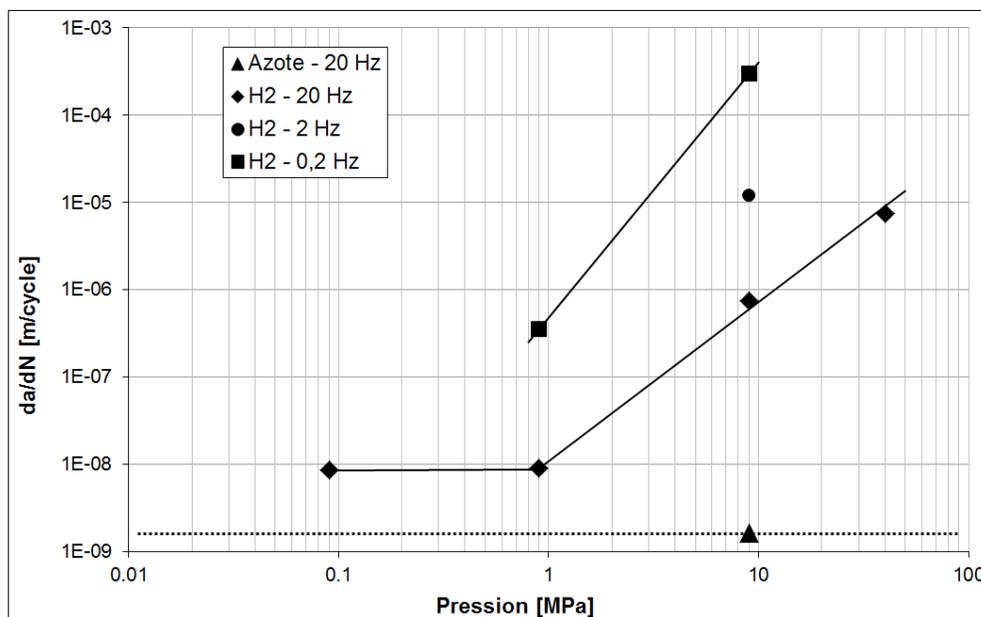


Figure 6 - 12 : Influence de la pression et de la fréquence de chargement cyclique sur les vitesses de propagation de fissures pour le niveau de  $\Delta K = 6.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$

Bien que des données supplémentaires soient nécessaires pour établir des conclusions définitives, il semble qu'il existe un seuil de pression qui contrôle l'augmentation des vitesses de propagation pour une fréquence donnée. Au-dessous de ce seuil (environ 1 MPa à 20 Hz pour cette valeur de  $\Delta K$ ), l'augmentation, qui reste de toute façon modérée, est indépendante de la pression d'hydrogène. Au-dessus du seuil, la vitesse de propagation de fissures est fortement augmentée par la pression d'hydrogène. En outre, il semble qu'à basse fréquence, la valeur du seuil est décalée vers une pression plus basse. De plus, à basse fréquence, l'augmentation de la vitesse de propagation présente une dépendance à la pression plus élevée. Nous pouvons alors imaginer que la propagation soit dépendante de l'exposition à l'hydrogène, c'est-à-dire à l'action contemporaine de la pression et du temps d'exposition (qui dépend de la fréquence).

La Figure 6 - 13 montre les mêmes vitesses de propagation de la figure précédente, calculées en fonction du temps  $da/dt$ , en fonction de la pression d'hydrogène. Dans ce cas, les vitesses sont indépendantes de la fréquence de chargement, et nous pouvons comparer à celles-ci les résultats de propagation sous un chargement statique.

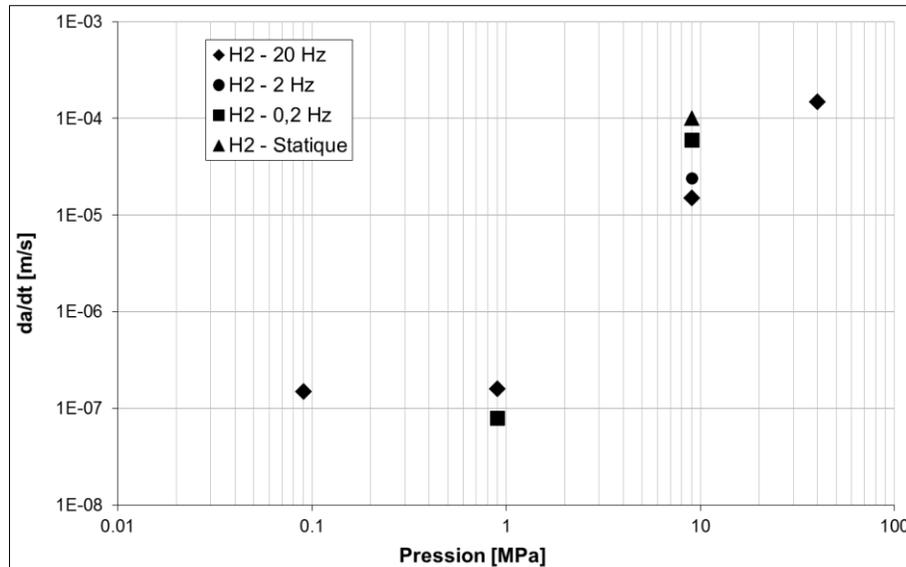


Figure 6 - 13 : Influence de la pression d'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissure calculées en fonction du temps pour l'acier 15-5PH

Pour une pression d'hydrogène de 9 MPa et une valeur de  $K = 21.6 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (ce qui correspond à  $\Delta K = 6.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ), nous avons mesuré une vitesse de propagation  $da/dt = 10^{-4} \text{ m/s}$ , du même ordre des vitesses observées sous un chargement cyclique. La figure montre un seuil de pression, au-delà duquel les vitesses de propagation  $da/dt$  sont fortement augmentées. La diminution de la fréquence a un effet limité sur les vitesses  $da/dt$ , ce qui suggère que la contribution du mode statique à la propagation est prédominante. Ce résultat sera utilisé pour le développement du modèle de zone cohésive présenté dans le chapitre 5. En particulier, la propagation de fissures sous chargement statique permettra d'améliorer la compréhension de la diffusion en pointe de fissure, ainsi que de simuler la transition des vitesses de propagation observée expérimentalement.

Les observations MEB montrent que la présence d'hydrogène influence la morphologie des surfaces de rupture. Cela est vrai non seulement à des valeurs de  $\Delta K$  élevées, mais aussi à de faibles valeurs, où le changement brutal de vitesses de propagation n'a pas encore eu lieu, et où les vitesses sont similaires à celles sous azote. Cet effet augmente avec la pression. Si l'on considère, par exemple, la surface de rupture à  $\Delta K = 4 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sous 40 MPa d'hydrogène et une fréquence de 20 Hz (Figure 6 - 7a), et celle sous air ou sous azote (Figure 6 - 4b), on peut voir que, bien que les vitesses de propagation sont du même ordre, la morphologie de la surface de la fissure est complètement différente. Sous 0.09 MPa d'hydrogène, par contre, le changement des surfaces de rupture est limité (Figure 6 - 2b). Ces considérations étayent le fait que la présence de l'hydrogène en pointe de fissure modifie les mécanismes de rupture, ce qui entraîne un abaissement de la résistance à la fissuration, plus ou moins important en fonction de la pression d'hydrogène.

La Figure 6 - 14 présente les vitesses de propagation de fissure exprimées en fonction du temps ( $da/dt$ ), afin de comparer les vitesses de propagation pour les essais de fatigue (pour toutes les fréquences) et les essais statiques. Pour les essais cycliques nous avons considéré la valeur maximale atteinte pendant le cycle  $K_{max}$ . L'essai sous azote et celui sous faible pression d'hydrogène ne présentent pas de transition des vitesses de propagation. L'augmentation des vitesses de propagation avec la valeur de  $\Delta K$  reste alors constante (linéaire dans un repère log-log), et représentent le cas de « fatigue pure ». Par contre, l'effet d'une forte pression d'hydrogène (9 MPa pour les autres courbes) cause une transition des vitesses de propagation. Comme observé dans l'essai statique en charge imposée, après le temps d'incubation la fissure se propage à une vitesse très élevée, ce qui rend la contribution de la « fatigue pure » négligeable. Par ailleurs, Wei [199] a montré que pour des aciers à haute résistance l'incrément des vitesses de fissuration assisté par l'environnement peut être considérée comme la superposition de la propagation « under sustained loads » assistée par l'environnement sur la fatigue. Comme l'on peut observer sur les courbes, si on commence l'essai à  $K_{max} \geq 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , on n'observe pas de temps d'incubation, et les vitesses de propagation sont immédiatement très élevées. Si par contre on commence l'essai à une valeur de  $K_{max}$  plus faible, alors les vitesses sont initialement faibles, bien que les modes de rupture soient très différents par rapport aux essais sous azote et sous air. Le temps d'incubation dépend alors de la valeur de  $K$  imposée, ou, dans le cas de chargement cyclique, du  $K_{max}$  atteint pendant le cycle, ou, peut-être, d'une valeur moyenne de  $K$  (qui dépend du  $\Delta K$ , du rapport de charge et de la forme du signal de sollicitation).

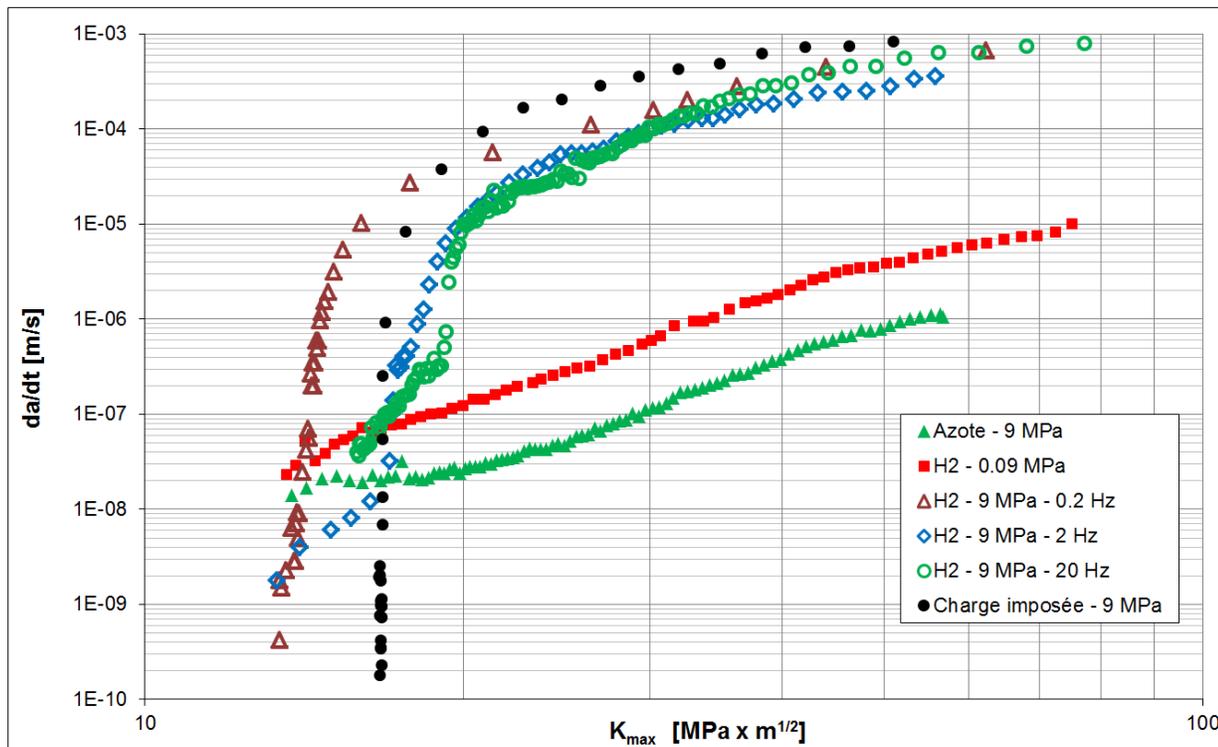


Figure 6 - 14 : Vitesses de propagation de fissures exprimées en fonction du temps ( $da/dt$ ), en fonction du  $K_{max}$  atteint pendant les cycles de fatigue. Comparaison des vitesses de propagation pour les essais statiques et les essais de fatigue (pour toutes les fréquences) sous 9 MPa d'hydrogène gazeux

Pour une valeur de  $K_{\max} \geq 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , sous 9 MPa d'hydrogène gazeux, les vitesses sont très élevées, indépendamment du type de chargement (si l'on considère la valeur de  $K_{\max}$  atteinte pendant le cycle). En effet, si on applique une charge cyclique qui correspond à une valeur de  $K_{\max} \geq 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , la fissure avance immédiatement comme sous chargement statique. De plus, on peut observer que la vitesse de propagation sous chargement statique est plus élevée par rapport aux essais de fatigue, parce que le  $K_{\max}$  n'est atteint que pour une petite portion du cycle.

Vasudevan et Sadananda [200] ont essayé de séparer les effets de la « fatigue pure » et de la propagation de fissure assistée par l'environnement (en anglais « environmentally assisted fatigue crack growth »), en comparant les données obtenues avec les résultats sous vide poussé, afin de quantifier l'effet de l'environnement. Ils affirment que l'environnement affecte la fissuration, en fonction de différents paramètres tels que la microstructure, les modes de glissement etc. Ils proposent différents types de comportement pour classifier la propagation de fissure assistée par l'environnement. Par exemple, la propagation peut être gouvernée par le  $K_{\max}$  ou par le  $\Delta K$ , donc par la composante statique ou par celle cyclique. Chaque mécanisme peut opérer dans des conditions différentes (environnement, microstructure etc.). Dans notre cas, pour l'acier 15-5PH, c'est le  $K_{\max}$  qui gouverne la fissuration. Si l'on atteint certaines conditions de pression et de  $K_{\max}$ , la propagation statique est prédominante.

Ces considérations sont valables à partir du seuil d'augmentation des vitesses proposé en Figure 6 - 12, c'est-à-dire à partir d'une pression d'hydrogène d'environ 1 MPa, au-dessous de laquelle il n'y a pas d'augmentation des vitesses de propagation, et donc, on peut supposer qu'il n'y aura pas de propagation statique, même pour un temps de maintien très long.

### 6.3 Déformation hors plan

Bien que dans la propagation de fissures les surfaces de rupture soient dans un plan, l'endommagement du matériau est volumique. Certains auteurs ont étudié la déformation plastique au voisinage de la pointe de fissure dans la propagation sous air [201–203], par exemple pour comparer des résultats numériques aux solutions analytiques. A l'heure actuelle aucune observation n'a été faite dans le cas de la propagation sous hydrogène gazeux. Bouchet et De Fouquet [204] ont étudié l'influence de l'environnement au voisinage d'une fissure de fatigue. Ils ont mesuré un gradient de dureté dans la zone plastique proche de la fissure plus élevé sous air par rapport à l'essai sous vide. Murakami *et al.* [205] ont réalisé des essais de propagation de fissures sous hydrogène gazeux, sur des aciers austénitiques. Ils montrent que la fissure qu'avance sous hydrogène produit une zone plastique plus petite qu'en l'absence d'hydrogène.

Un des faits marquants lors d'un essai de propagation de fissure est donc l'effet de l'environnement sur la plastification du matériau autour de la fissure. Afin de quantifier plus finement ce phénomène, nous avons décidé de mener une étude visant à identifier la modification de la déformation plastique hors plan en pointe de fissure en présence d'hydrogène.

On peut définir la déformation hors plan comme la déformation dans la direction « z », perpendiculaire au plan défini par la direction de la propagation de la fissure « x » et la direction de chargement « y » (Figure 6 - 15). Dans cette étude, nous avons analysé la variation de la déformation hors plan en présence d'hydrogène, et les liens entre cette déformation et le changement des mécanismes de rupture. Il s'agit ici d'une mesure de surface, en condition de contraintes planes, mesurée à l'aide d'un microscope confocal interférométrique.

Le Microscope Confocal Interférométrique disponible au laboratoire est le Talysurf CCI 6000, développé par Taylor & Hobson. Le principe de la microscopie confocale interférométrique se base sur l'interférence de la lumière : une source de lumière cohérente envoie un rayon lumineux, simultanément, vers un miroir de référence et vers la surface de l'échantillon ; ensuite, les rayons réfléchis convergent vers la camera CCD, où l'interférence se produit. En positionnant le plan focal de l'objectif à différents niveaux de profondeur dans l'échantillon, il est possible de réaliser une série d'images à partir desquelles on peut reconstruire une image numérique de la surface. Le déplacement vertical de l'objectif est imposé via un actuateur piézoélectrique, qui permet à l'appareil d'avoir une résolution verticale élevée (0.01 nm, selon le fabricant).

En conséquence, l'éprouvette fissurée est placée sous le microscope avec la direction « z » parallèle à l'axe du microscope.

La Figure 6 - 15 montre une demi éprouvette CT après l'essai de fissuration avec indication des directions « x » et « y ». Le but est d'avoir la mesure du déplacement « z » sur des lignes parallèles à la direction « y », par exemple, les trois lignes identifiées en Figure 6 - 15. Ces lignes peuvent correspondre à des valeurs de  $\Delta K$  différentes, ou bien à des conditions d'essai différentes (à l'air ou sous hydrogène, avant et après un changement de fréquence, etc.).



Figure 6 - 15 : Identification des directions de propagation de la fissure (x) et de chargement (y). On cherche les valeurs de z sur des lignes parallèles à la direction y, à partir de la lèvres de la fissure

La Figure 6 - 16 montre un exemple de cartographie 3D de la lèvres de fissure pour l'essai sous 9 MPa d'hydrogène gazeux à 20 Hz. On distingue en particulier la partie finale de la fissuration à l'air, et le début de la propagation sous 9 MPa d'hydrogène (dans les mêmes conditions de  $\Delta K$ , rapport de charge, fréquence de chargement et température).

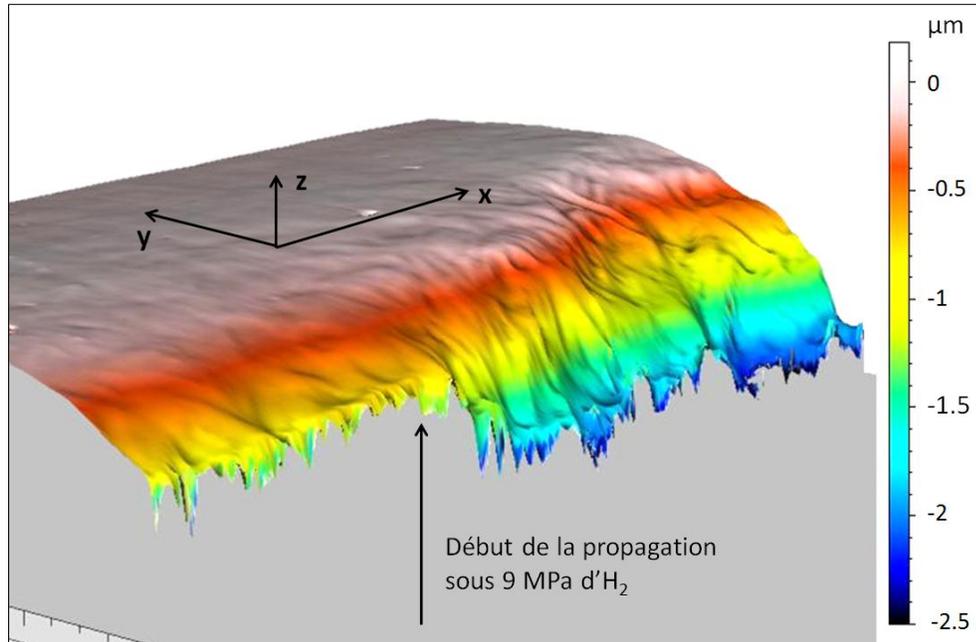


Figure 6 - 16 : Exemple de cartographie 3D de la lèvres de fissure pour l'acier 15-5PH. « x » représente la direction de propagation de la fissure. La flèche indique la fin de la préfissuration à l'air, et le début de la propagation sous 9 MPa d'hydrogène à 20 Hz

Comme évoqué précédemment, la résolution dans la direction « z » est très élevée, par contre elle est plus faible dans les directions « x » et « y » (environ 0.35 µm). La figure montre un cube de dimensions 350 x 350 x 10 µm. Il convient en outre de préciser que l'on visualise ici a priori l'évolution de la zone plastique monotone (qui dépend du  $K_{max}$ ) pour les essais cycliques. Etant donné la faible valeur de  $\Delta K$  appliquée, le déplacement suivant « z » est faible sous air. Il est par contre évident que la seule introduction de l'hydrogène gazeux au sein de l'autoclave cause une augmentation considérable de la déformation plastique au voisinage immédiat de la pointe de fissure, même si, pour cette faible valeur de  $\Delta K$ , les vitesses de propagation sont égales ou légèrement plus élevées par rapport à l'air.

La Figure 6 - 17 montre un schéma de l'acquisition des mesures de déplacement dans la direction « z » (que l'on appellera « retrait » dans les figures) à partir de la lèvres de la fissure (position « 0 » sur l'axe des abscisses, qui représentent la direction « y »). La mesure du retrait, que nous présenterons dans les prochaines figures, sera représentée par les valeurs du déplacement dans la direction « z » le long d'une ligne qui s'étend dans la direction « y », à partir de la lèvres de la fissure, et perpendiculaire à celle-ci (ligne noire dans la Figure 6 - 17).

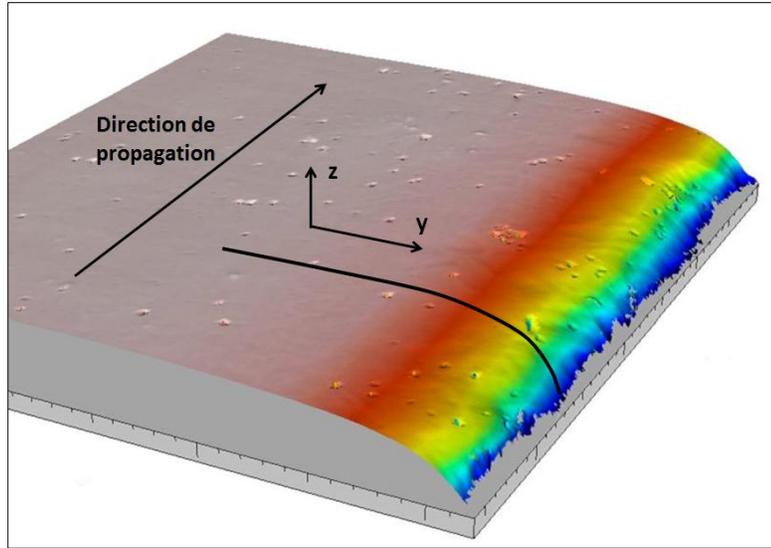


Figure 6 - 17 : Schéma de l'acquisition des mesures de « retrait du matériau » dans la direction « z », sur une ligne qui s'étend dans la direction « y », à partir de la lèvres de la fissure, et perpendiculaire à celle-ci (ligne noire dans la figure)

La Figure 6 - 18 montre les mesures de déplacement hors plan pour les essais sous azote et sous air, pour une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Dans ces conditions on n'observe pas de différences notables, comme nous nous y attendions étant donné les vitesses de propagation et le mode de rupture inchangés. On précise ici que la taille de la zone plastique monotone pour ce matériau, calculée par les formules présentes dans la littérature [193], est d'environ  $75 \mu\text{m}$  pour  $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  à  $R=0.7$ , et  $300 \mu\text{m}$  pour  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , ce qui est cohérent avec les mesures de « retrait » de la figure.

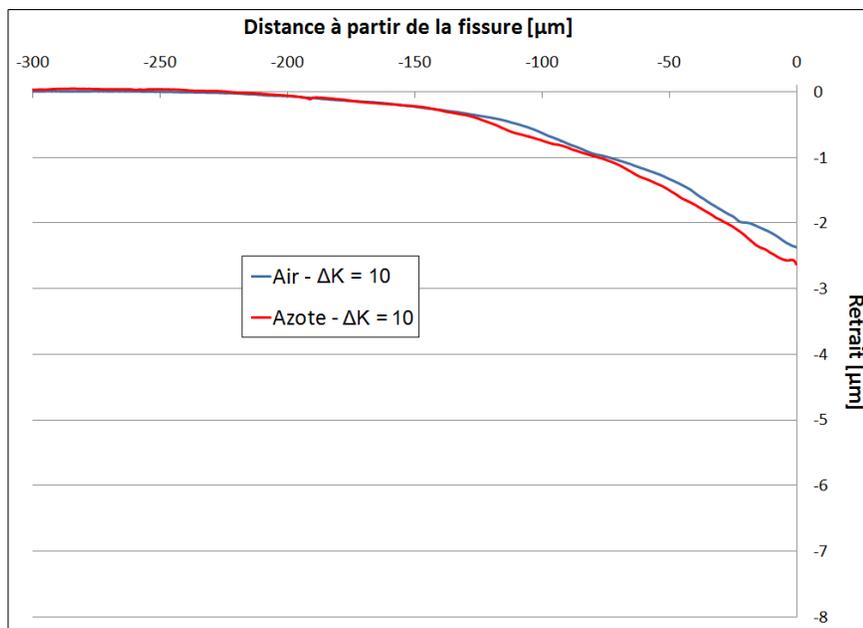


Figure 6 - 18 : « retrait » latéral (en  $\mu\text{m}$ ) dans le voisinage de la lèvres de fissure pour les essais sous air et sous azote, pour une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$

La Figure 6 - 19 montre la déformation hors plan pour l'essai réalisé sous 9 MPa d'azote. Les mesures ont été effectuées pour différents niveaux de  $\Delta K$ . On peut observer que la déformation hors plan augmente progressivement quand la valeur de  $\Delta K$  appliquée augmente. L'examen des courbes indique que l'augmentation du  $\Delta K$  entraîne certes comme attendu une augmentation de la taille de la zone plastifiée, mais aussi augmentation de la déformation plastique hors plan maximale.

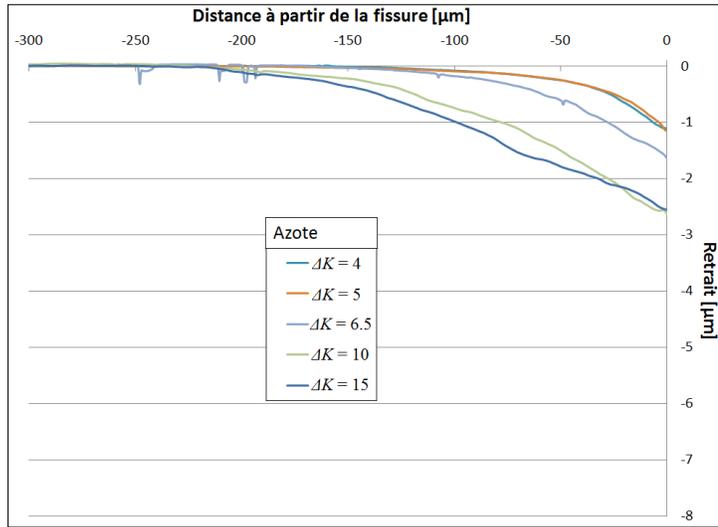


Figure 6 - 19 : « retrait » latéral (en  $\mu\text{m}$ ) dans le voisinage de la lèvre de fissure pour l'essai sous azote, en fonction de la valeur de  $\Delta K$

La Figure 6 - 20 montre l'influence d'une faible pression d'hydrogène sur la déformation hors plan, dans l'intervalle de  $\Delta K$  étudié. Les résultats, comparés à ceux de l'essai sous azote, montrent une légère augmentation de la déformation, en accord avec l'effet limité sur les vitesses de fissuration et les subtiles différences sur les surfaces de rupture.

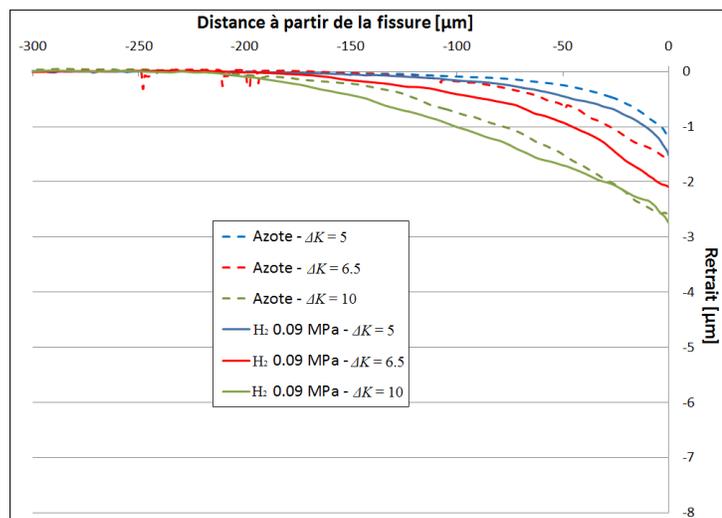


Figure 6 - 20 : Influence d'une faible pression d'hydrogène sur le « retrait » du matériau dans le voisinage de la lèvre de fissure, pour différents  $\Delta K$

La Figure 6 - 21 montre l'influence d'une pression élevée d'hydrogène (9 MPa) sur la déformation hors plan pour des chargements cycliques de 20 Hz et 0.2 Hz, et un chargement statique en charge imposée. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus sous azote. Les courbes montrent la variation du déplacement hors plan à faible  $\Delta K$ , c'est-à-dire avant la transition de vitesses de propagation ( $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , Figure 6 - 21a), et à fort  $\Delta K$ , bien après la transition des vitesses ( $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , Figure 6 - 21b). Pour l'essai en chargement statique, les valeurs de « retrait » ont été mesurées pour la valeur de  $K$  qui correspond au  $K_{\text{max}}$  des essais cycliques (dans le cas de la Figure 6 - 21,  $K = 16.7 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sur la gauche et  $K = 33.3 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sur la droite).

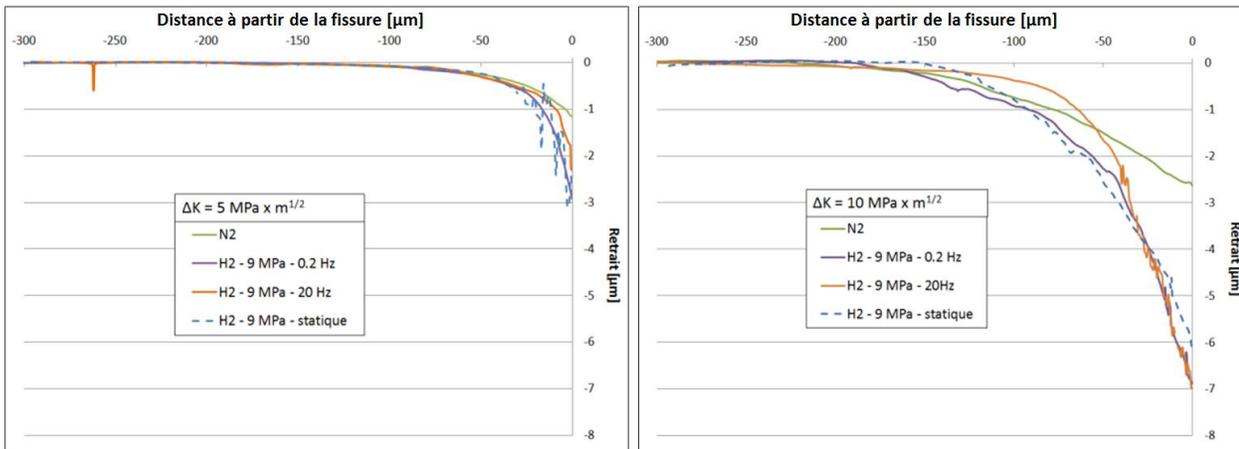


Figure 6 - 21 : Variation de la déformation hors plan sous 9 MPa d'hydrogène gazeux, à  $\Delta K = 5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (a), et à  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b)

A faible valeur de  $\Delta K$  les courbes se superposent au sein de la zone plastifiée pour une distance à la pointe de fissure comprise entre 110  $\mu\text{m}$  et 30-40  $\mu\text{m}$ . Dans les 30-40  $\mu\text{m}$  à l'intérieur de la zone plastifiée les plus proches de la pointe, le retrait devient plus important sous hydrogène. Pour donner un ordre de grandeur, le retrait est double pour l'essai à 20 Hz (loin de la transition des vitesses) et 2.5 fois plus élevé pour les essais à 0.2 Hz et sous chargement statique, qui donnent des résultats très proches. Par ailleurs, si la taille de la zone plastifiée (dans le plan « x-y ») n'est pas affectée en présence d'hydrogène, le gradient de déformation est bien plus marqué. A fort  $\Delta K$ , les différences entre les courbes sont plus importantes, mais le rapport entre la déformation sous azote et sous 9 MPa d'hydrogène est identique, avec la même taille de zone plastifiée.

La Figure 6 - 22 montre l'évolution de la déformation hors plan pour l'essai réalisé sous 40 MPa d'hydrogène gazeux, pour des valeurs de  $\Delta K = 3.5, 5$  et  $10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . On observe une évolution de la déformation hors plan similaire à celle mesurée pour les essais sous 9 MPa d'hydrogène, avec toutefois des valeurs de retrait du matériau plus élevées. La courbe mesurée pour  $\Delta K = 3.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  est comparée à la fissuration sous air, tandis que les courbes obtenues pour  $\Delta K = 5$  et  $10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sont comparées aux courbes sous azote, présentées en Figure 6 - 19.

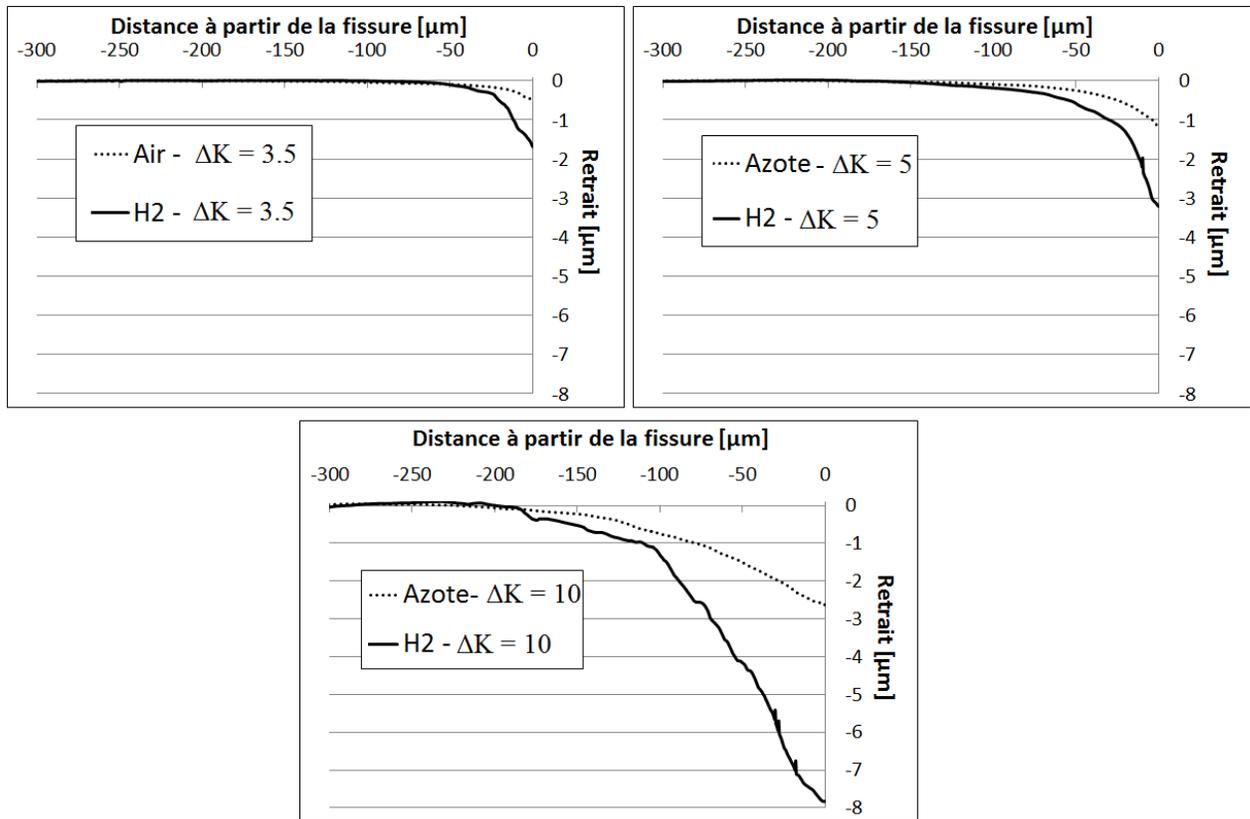


Figure 6 - 22 : « retrait » du matériau dans le voisinage de la lèvres de fissure, pour l'essai réalisé sous 40 MPa d'hydrogène gazeux, pour des valeurs de  $\Delta K = 3.5, 5$  et  $10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$

On peut observer que la présence d'une pression de 40 MPa d'hydrogène gazeux ne modifie pas la taille de la zone plastifiée en pointe de fissure (de l'ordre de 50 à 200  $\mu\text{m}$  pour un niveau de  $K_{max}$  de 10 à 33  $\text{MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Par contre, le retrait du matériau au voisinage de la lèvres de la fissure augmente avec la pression d'hydrogène, quel que soit l'intensité du chargement. Ces résultats confirment les tendances observées à plus faible pression. En particulier, pour les trois valeurs de  $\Delta K$  représentées en Figure 6 - 20, l'augmentation du retrait du matériau par rapport à l'essai sous air est négligeable sous 0.09 MPa ; en revanche il est 2.5 fois plus élevé sous 9 MPa et 3 fois plus élevé sous 40 MPa. Ces observations suggèrent une forte localisation de la plasticité en pointe de fissure en présence d'hydrogène, très élevée dans les conditions qui amènent au régime de propagation fortement accéléré.

En conclusion, alors que la taille de la zone plastifiée n'est pas influencée par la présence de l'hydrogène, le retrait latéral au niveau des lèvres de la fissure est légèrement plus élevé par rapport aux essais sous air et sous azote dans le cas de faible pression d'hydrogène et à faible  $\Delta K$  sous haute pression. Ce retrait est en outre beaucoup plus important à partir de la transition des vitesses de propagation (haute pression et faible fréquence), ainsi que dans le cas de propagation statique, traduisant des niveaux de déformation plus élevés au voisinage de la pointe et par conséquent un gradient de déformation plus marqué. Cet effet de l'hydrogène sur la plasticité est gouverné par la transition des vitesses de propagation, et donc il est lié à la composante statique

de la fissuration. Il en résulte que l'augmentation de la déformation plastique hors plan dépend de l'exposition, comme montré pour les vitesses de propagation dans le paragraphe 6.2.5, et l'augmentation du retrait est liée à la pression d'hydrogène gazeux. Comme nous avons observé sur les fractographies, après la transition des vitesses de propagation on observe toujours un changement du mode de rupture. On peut alors affirmer que cette augmentation du retrait est due au changement des mécanismes de propagation de la fissure, qui se vérifie à partir de la fin de la transition des vitesses de propagation.

Ces résultats seront pris en compte dans le développement du modèle numérique. L'ajout de l'influence de l'hydrogène sur les paramètres mécaniques du matériau pourrait nous permettre de représenter les observations expérimentales sur la déformation hors plan. De plus, d'un point de vue plus fondamental, cette modification nous aide à comprendre l'effet réel de l'hydrogène sur la réponse mécanique du matériau en pointe de fissure.

## Bilan

Des essais complémentaires de fissuration sous hydrogène ont été effectués sur l'acier martensitique 15-5PH sur le banc d'essai Hycomat. Il en ressort qu'augmenter la pression d'hydrogène ou réduire la fréquence de chargement provoquent une augmentation importante des vitesses de propagation par rapport à celles sous air, pour une valeur de  $\Delta K$  ou de  $K_{\max}$  qui dépend de la pression d'hydrogène (Figure 6 - 12 et 6 - 13), mais aussi de l'histoire de chargement, à cause notamment du temps d'incubation (ce qui signifie que la transition peut être décalée à des différentes valeurs de  $\Delta K$  ou de  $K_{\max}$  en fonction du temps d'exposition dans la première partie de l'essai, ce qui justifie le décalage de la transition des vitesses vers des valeurs plus faibles de  $\Delta K$  pour une réduction de la fréquence de chargement, comme montré en Figure 6 - 8). Les résultats des essais de propagation statique à charge imposée et à déplacement imposée montrent que la progression de la fissure n'intervient qu'après un certain temps d'incubation. Les courbes de propagation sous sollicitation statique ( $da/dt$ ), comparées aux courbes de fissuration, suggèrent une superposition de l'effet de propagation statique à un effet de « pure fatigue » (Figure 6 - 14).

Les observations des surfaces de rupture produites sous hydrogène présentent différents modes de rupture en fonction des conditions de fissuration. En particulier, la propagation est partiellement intergranulaire lors de la transition des vitesses, et devient complètement transgranulaire pour le régime stationnaire à haute vitesse, à partir d'une valeur de  $K = 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (considéré comme valeur statique ou comme  $K_{\max}$  pendant le cycle). Cette valeur est valable pour une pression de 9 MPa d'hydrogène gazeux, et diminue à l'augmenter de la pression.

Sur la base des résultats expérimentaux nous pouvons affirmer que la contribution des différents mécanismes d'endommagement induit par l'hydrogène à la propagation de fissures dépend de la pression d'hydrogène, du niveau de  $\Delta K$  et de  $K_{\max}$ , et de la fréquence de chargement cyclique.

Nous pouvons supposer qu'un mécanisme de fragilisation HEDE accélère la cinétique de propagation des fissures en présence d'hydrogène. Les fortes vitesses de propagation, associées aux changements des modes de rupture, intergranulaires à faible  $\Delta K$ , et avec un clivage fragile à

$\Delta K$  élevé, sont cohérents avec l'idée de la réduction de l'énergie de cohésion à cause de la présence d'hydrogène en pointe de fissure. De plus, l'étude de la déformation hors plan a mis en évidence un effet de l'hydrogène sur la plasticité en pointe de fissure, en particulier une localisation de la déformation plastique en pointe de fissure, avec un fort gradient de plasticité en présence d'hydrogène (qui est cohérente avec les mécanismes HELP ou AIDE) au-delà de la transition des vitesses de propagation. Il en résulte donc un équilibre entre HEDE, HELP et AIDE, avec une prépondérance de l'un ou de l'autre en fonction de l'ensemble des conditions d'essai.

Dans la partie finale de ce manuscrit (Discussion et conclusion) nous allons confronter les résultats expérimentaux sur les deux matériaux analysés, à savoir le fer Armco et l'acier martensitique 15-5PH, afin d'identifier les points communs et les différences, et essayer d'établir des conclusions plus générales sur le phénomène de la fissuration assistée par l'hydrogène.

Les résultats de la campagne expérimentale menée sur l'acier 15-5PH seront utilisés pour la comparaison et le développement du modèle numérique présenté dans le chapitre précédent. Il s'agit d'un modèle de zone cohésive, avec une loi de traction-séparation influencée par l'hydrogène, qui, par définition, représente le mécanisme HEDE. Ce modèle présente certaines limites, en particulier dans la simulation des vitesses de propagation très élevées observées expérimentalement. Le développement du modèle permettra de mieux représenter les résultats expérimentaux. Les modifications apportées au modèle nous permettront d'étudier le transport de l'hydrogène en pointe de fissure, et son effet sur la plasticité, et donc de mieux comprendre le rôle des différents mécanismes d'endommagement sur la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène. En particulier, deux modifications principales nous permettront d'analyser les mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène :

1. Nous avons montré un effet marqué de l'hydrogène sur la déformation plastique en pointe de fissure, ce qui indique une interaction forte entre plasticité et hydrogène, qui n'est pas prise en compte dans le modèle initial. Ce type de fragilisation, qui reprend un mécanisme de type HELP, doit être introduit dans la modélisation. En particulier, nous allons étudier l'effet de la concentration d'hydrogène sur la plasticité des éléments de volume, avec une variation des paramètres mécaniques du matériau (en particulier la limite d'élasticité) en fonction de la concentration d'hydrogène locale. L'étude paramétrique de cette modification devrait permettre de représenter l'augmentation de la déformation plastique, localisée à la pointe de la fissure, observée expérimentalement, sans que cela ait un effet sur la taille de la zone plastifiée. Le but est de mieux comprendre cette interaction entre l'hydrogène et la réponse mécanique du matériau. Celle-ci sera une des modifications principales dans le modèle, qui tient compte de l'influence de l'hydrogène sur la plasticité.
2. Réciproquement, il faut prendre en compte aussi l'effet que la plasticité peut avoir sur la variation de diffusion et de solubilité de l'hydrogène en pointe de fissure. En particulier, à cause de l'intense activité plastique, la formation et le mouvement des dislocations peuvent modifier le transport et/ou le piégeage des atomes d'hydrogène. D'ailleurs, dans l'analyse du fer pur, nous avons montré une augmentation de la densité des dislocations dans les

différents états déformés, corrélée à une augmentation importante de la solubilité d'hydrogène, et, en particulier, de l'hydrogène piégé de façon irréversible. Le modèle de zone cohésive ne modélise pas les sites interstitiels et les sites de piégeage, de type dislocations. Par contre, on modélise la diffusion de l'hydrogène avec une composante dépendant du gradient de concentration (loi de Fick) et une qui dépend de la contrainte hydrostatique. Nous avons étudié le rôle de ces populations d'hydrogène sur la fragilisation, et en particulier, l'augmentation de la composante de diffusion due à la contrainte hydrostatique. Ceci permettra de représenter une diffusion plus importante en pointe de fissure, et une accumulation de l'hydrogène près des lèvres de la fissure, ce qui permettra de nous rapprocher des résultats expérimentaux sur les vitesses de propagation et sur la déformation hors plan.

## Chapitre 7

# Evolution du modèle 2D : diffusion de l'hydrogène et propagation de fissures de fatigue

Ce chapitre présente la poursuite des travaux de Clara Moriconi [12] sur le développement d'un modèle de zone cohésive 2D avec une loi de traction-séparation spécifique, utilisée pour décrire l'endommagement progressif du matériau sous chargement cyclique et en présence d'hydrogène, ce qui est cohérent avec le mécanisme HEDE. La formulation du modèle et les premiers résultats ont été présentés dans le chapitre 5.

Tout d'abord, les limites du modèle de Moriconi seront étudiées, et nous essayerons d'apporter des améliorations en identifiant l'origine des problèmes de convergence, et en trouvant un jeu de paramètres qui permette la réalisation d'une série complète de simulations sur une large gamme de  $\Delta K$ . Nous analyserons l'influence de certains paramètres, tels que l'énergie libre  $\Delta g_b^0$ , le temps d'incrément, ou le coefficient de diffusion, sur les vitesses de propagation simulées, et nous comparerons les résultats numériques aux résultats expérimentaux obtenus pour l'acier inoxydable martensitique 15-5PH, présentés dans le chapitre 6.

De plus, nous avons montré expérimentalement un effet de l'hydrogène sur la déformation plastique en pointe de fissure, ce qui suggère que la seule représentation du mécanisme HEDE (pure décohésion) n'est pas suffisante pour décrire l'ensemble des phénomènes induits par l'hydrogène. L'ajout de l'influence de l'hydrogène sur la limite d'élasticité du matériau ainsi que la modification de la loi de diffusion de Krom (qu'on pourra assimiler à la contribution des mécanismes HELP et/ou AIDE) permettront d'améliorer la réponse du modèle et, plus généralement, de mieux comprendre le comportement de l'hydrogène au sein du matériau et son effet sur les propriétés mécaniques et les mécanismes de rupture en pointe de fissure.

### 7.1 Vérification et modifications du modèle

Les simulations éléments finis visent en premier lieu à reproduire le comportement en fissuration d'une demi-éprouvette CT 40 pré-fissurée sur laquelle on applique un chargement statique, monotone ou cyclique, sous différentes pressions d'hydrogène. Une couche d'éléments cohésifs est placée le long du trajet de fissure (Figure 7 - 1). La propagation de la fissure se produit par rupture des éléments cohésifs en fond de fissure lorsque l'endommagement atteint une valeur critique. La loi de traction-séparation qui régit le comportement des éléments cohésifs a été présentée dans le paragraphe 5.2.1. Le modèle ainsi développé présente des problèmes de convergence remarqués lors de l'exploration des limites du modèle, par exemple pour des valeurs de  $\Delta K$  élevées en présence de fortes pressions d'hydrogène, ou, encore, en utilisant un coefficient de diffusion très élevé. Les arrêts du calcul dus aux difficultés de convergence sont plutôt aléatoires, dans le sens où ils dépendent d'un jeu de paramètres dont il est difficile d'identifier a

priori l'exacte combinaison assurant la convergence. Notre but est par conséquent de renforcer et d'optimiser la robustesse des calculs. Certains auteurs ont également observé des problèmes de convergence numérique pour les modèles de zone cohésive [206,207]. Ils peuvent être dus à la souplesse des éléments de volume, ou à l'irrégularité du maillage, ou encore à un incrément de temps trop grand. De plus, les paramètres de la loi cohésive (et en particulier l'influence de la concentration d'hydrogène sur leur valeur) jouent un rôle important sur la convergence des simulations. Une valeur très élevée de la rigidité initiale, par exemple, peut avoir des effets fortement négatifs sur la convergence.

### 7.1.1 Géométrie, maillage et influence de la taille de maille

La géométrie du modèle développé par Moriconi est présentée dans le paragraphe 5.3. Les éléments cohésifs sont des éléments d'interface, placés entre les éléments de volume. Ces derniers, que dorénavant nous appellerons éléments de bulk, sont les éléments 2D en dehors de la zone cohésive, dont le comportement est décrit par la subroutine UMAT (présentée dans 5.2.3). Dans cette étude, à cause des problèmes de convergence rencontrés, nous avons modifié cette géométrie. Par exemple, afin d'avoir une évolution de la taille des éléments moins brusque en approchant de la zone raffinée en fond de fissure, tout en conservant la taille des plus petits éléments de  $2\ \mu\text{m}$ , nous avons réduit la taille des éléments de bulk plus éloignés de la pointe de la fissure. La Figure 7 - 1 montre le modèle 2D d'une demi-éprouvette CT, maillé avec une couche d'éléments cohésifs sur le trajet de fissure (en rouge), et une zone raffinée en pointe de fissure.

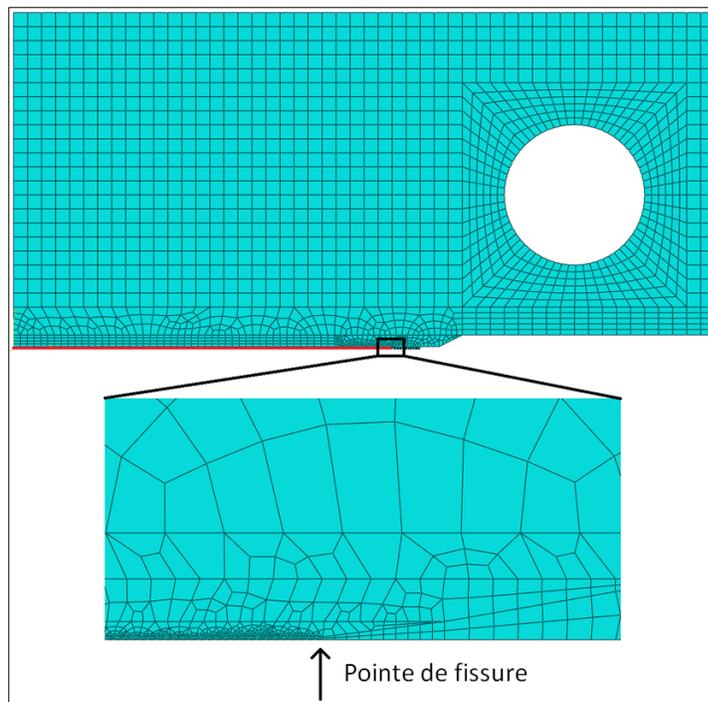


Figure 7 - 1 : Modèle 2D d'une demi-éprouvette CT avec une couche d'éléments cohésifs sur le trajet de fissure (en rouge), et une zone raffinée en pointe de fissure

De plus, afin d'identifier une configuration qui puisse minimiser les problèmes de convergence, nous avons étudié l'influence de  $a_0$  (longueur de fissure initiale) sur les résultats des simulations, avec une valeur de  $a/W$  qui varie dans l'intervalle de 0.3 (valeur utilisée par Moriconi) à 0.6. Logiquement, nous n'avons observé aucune influence de ce paramètre sur les vitesses de propagation de la fissure, ce qui suggère que les conditions aux limites sont bien imposées, et que le maillage grossier loin de la fissure n'empêche pas un transfert de la charge correct. Par contre, nous n'avons pas identifié une géométrie qui permette de surmonter les problèmes de convergence, qui apparaissent de façon aléatoire dans l'intervalle habituel de pressions et de valeurs de  $\Delta K$ , régulièrement pour des valeurs de  $\Delta K$  élevées.

En conclusion, les problèmes de convergence ne sont pas principalement dus à la géométrie ou à l'irrégularité du maillage.

Moriconi a réalisé une étude de l'influence de la taille de maille sur les vitesses de propagation de fissures en l'absence d'hydrogène (concentration d'hydrogène nulle sur tous les nœuds). Il s'agit plus précisément de la taille des éléments situés en pointe de fissure, les plus petits du modèle.

Comme évoqué dans le paragraphe 5.3, la taille des éléments en pointe de fissure doit être suffisamment petite pour éviter le phénomène de dépendance au maillage, mais pas trop petite pour des problèmes de temps de calcul. Pour le matériau considéré, en contraintes planes, on peut estimer une taille de zone plastique d'environ  $7 \mu\text{m}$  à  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  [193]. McClung et Sehitoğlu [196] ont établi qu'il est nécessaire d'assurer que dix éléments soient présents dans la zone plastifiée cyclique en pointe de fissure, ce qui correspond à une taille de  $0.7 \mu\text{m}$  dans notre cas. Moriconi n'a pas observé de différences notables entre les tailles de  $0.4$ ,  $1$  et  $2 \mu\text{m}$  sur les vitesses de propagation de fissure sous environnement inerte. Elle a alors utilisé la taille de  $2 \mu\text{m}$ . Le comportement des éléments cohésifs et de bulk vis-à-vis de la convergence peut cependant varier en présence d'hydrogène. En effet, les simulations de propagation de fissures en environnement inerte présentent beaucoup moins de problèmes de convergence que celles où l'on impose une certaine concentration d'hydrogène, comme nous le montrerons dans le paragraphe suivant.

Compte tenu de ces considérations, nous avons réalisé une étude de l'influence de la taille de maille sur la convergence des calculs et sur les vitesses de propagation de fissures. L'étude a été réalisée en présence d'une concentration d'hydrogène qui correspond à une pression de  $9 \text{ MPa}$  d'hydrogène gazeux, calculée avec la loi de Sievert (équation 1.3).

Les vitesses de propagation sous chargement cyclique ont été relevées pour quatre tailles de maille :  $0.4 \mu\text{m}$ ,  $1 \mu\text{m}$ ,  $2 \mu\text{m}$  et  $4 \mu\text{m}$ . A l'instar de Moriconi, nous avons choisi un chargement caractérisé par une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et un rapport de charge  $R=0.7$ , ce qui représente les conditions pour lesquelles les paramètres de la TSL ont été identifiés. Les paramètres de la TSL, identifiés par Moriconi et utilisés pour nos calculs, sont les suivants :

$$\begin{array}{lll}
 K_n = 10^7 \text{ MPa} & m_m = 450 \text{ J/m}^2 & m_c = 60000 \text{ J/m}^2 \\
 & C_m = 20 \text{ J/m}^2 & C_c = 500 \text{ J/m}^2 \\
 & n_m = 2.6 & n_c = 1
 \end{array}$$

A cause de problèmes observés de répétabilité des résultats, en particulier pour le modèle avec une taille de 4  $\mu\text{m}$ , les simulations ont été étendues aux valeurs  $\Delta K = 7.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et  $\Delta K = 15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . A part de petites différences dans le régime transitoire initial, c'est-à-dire à la fin du chargement monotone, nous pouvons affirmer que la taille des éléments en pointe de fissure a une influence très modérée sur les vitesses de propagation prédites dans le régime cyclique « stable » (Tableau 7 - 1). En ce qui concerne le temps de calcul, pour un même nombre de cycles, il augmente linéairement avec le nombre d'éléments du modèle (environ 28000 pour le modèle avec une taille des éléments raffinés de 0.4  $\mu\text{m}$ , 12000 pour 1  $\mu\text{m}$ , 5000 pour 2  $\mu\text{m}$ , et 1500 pour 4  $\mu\text{m}$ ). Il y a alors un facteur d'augmentation de 2.5 - 3 pour une diminution du 50% de la taille des éléments plus petits.

$\Delta K \text{ [MPa} \times \text{m}^{1/2}]$	Vitesses de propagation pour différentes tailles de maille			
	0.4 $\mu\text{m}$	1 $\mu\text{m}$	2 $\mu\text{m}$	4 $\mu\text{m}$
7.5	1.40 E-08	1.36 E-08	1.76 E-08	1.81 E-08
10	3.66 E-08	3.40 E-08	3.88 E-08	/
15	9.36 E-08	1.18 E-07	1.35 E-07	/

Tableau 7 - 1 : Influence de la taille de maille sur les vitesses de propagation de fissure, pour les valeurs de  $\Delta K = 7.5, 10$  et  $15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ .

Par contre, cette taille peut influencer la convergence des simulations. En effet, le modèle avec une taille de maille de 4  $\mu\text{m}$  a présenté le taux le plus élevé de simulations arrêtées pour problèmes de convergence, ce qui nous empêche d'obtenir des valeurs des vitesses de propagation simulées pour les valeurs de  $\Delta K = 10$  et  $15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Par contre, nous n'avons pas observé de différences relatives à la convergence entre les autres tailles testées. Il a donc été décidé d'utiliser un modèle avec des éléments cohésifs de taille 2  $\mu\text{m}$ , un maillage raffiné des éléments de bulk de 2  $\mu\text{m}$  sur le trajet de la fissure, et une taille maximale des éléments de bulk loin de la fissure de 1 mm. Ce modèle 2D a été choisi comme maillage de référence, et il sera utilisé pour toutes les simulations qui suivent.

### 7.1.2 Etude de la convergence des calculs

L'ensemble du code a été analysé, afin d'identifier les sources d'erreur qui peuvent causer l'arrêt de la simulation. Un exemple concerne l'étude de l'algorithme de Newton dans la subroutine UMAT, qui permet de calculer le résidu, pour incrémenter le multiplicateur plastique à chaque incrément de temps et pour chaque élément de volume. Cet algorithme a été amélioré afin d'éviter des possibles conditions d'instabilité.

En plus de certains détails de programmation qui ont été corrigés, nous avons étudié l'influence de certains paramètres sur le résultat des simulations. Nous allons présenter l'influence de deux paramètres principaux :

- L'énergie libre  $\Delta G_b^0$ , qui intervient dans la TSL, dans le calcul du taux de recouvrement en hydrogène ;

- La régularisation visqueuse, qui intervient dans le module relatif à la TSL, plus précisément dans le calcul des variables d'endommagement monotone et cyclique.

De la valeur de l'énergie libre  $\Delta G_b^0$  dépend le calcul du taux de recouvrement en hydrogène  $\theta$ , comme l'indiquent les équations 1.1 et 1.2. De nombreuses valeurs ont été proposées dans la littérature, autour de la valeur de 30 kJ/mol [24–26]. Afin d'évaluer l'influence de la valeur de l'énergie libre  $\Delta G_b^0$  sur les résultats des simulations, nous avons choisi la simulation avec  $\Delta K = 7.5 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et une pression de 9 MPa, et nous avons réalisé une série de calculs avec différentes valeurs de  $\Delta G_b^0$ . Les simulations ne convergent pas pour  $\Delta G_b^0 < 25 \text{ kJ/mol}$  et  $\Delta G_b^0 > 60 \text{ kJ/mol}$ . Dans cet intervalle, les vitesses de propagation restent quasiment inchangées d'une simulation à l'autre pour une valeur de  $\Delta G_b^0$  comprise entre 25 et 40 kJ/mol, puis augmentent de 40 à 60 kJ/mol (jusqu'à un ordre de grandeur plus élevé à 60 kJ/mol). Les paramètres de la TSL étant identifiés avec la valeur d'énergie libre de 36 kJ/mol, et cette valeur étant dans l'intervalle de  $\Delta G_b^0$  qui donne des vitesses constantes, loin des limites de l'intervalle de convergence, nous avons décidé de conserver la valeur d'énergie libre  $\Delta G_b^0 = 36 \text{ kJ/mol}$  pour les calculs successifs. Par ailleurs, cette valeur est similaire à celles identifiées expérimentalement dans la littérature, et donc elle est physiquement valide.

Un autre paramètre qui influence les résultats des simulations est la régularisation visqueuse. Cette modification peut être apportée avec deux objectifs principaux : réduire la dépendance au maillage, et favoriser la convergence des simulations. Nous avons déjà discuté la dépendance au maillage dans le paragraphe précédent, et nous avons montré que le maillage de référence choisi ne présente pas ce type de problème. C'est pourquoi ici nous nous intéresserons à l'effet de l'utilisation de la régularisation visqueuse sur la convergence du modèle.

Chaboche et al. [208] ont rencontré des problèmes d'instabilité numérique dans un modèle de zone cohésive qui décrit le décollement d'interface par une progressive perte de résistance. Ils ont proposé une solution en utilisant la régularisation visqueuse pour éliminer les « sauts » de la solution. De même, nous avons choisi cette méthode afin d'améliorer la convergence des calculs. Dans le modèle proposé, la régularisation visqueuse intervient dans la TSL, dans le calcul des variables d'endommagement monotone et cyclique, et induit des effets directs sur le calcul de l'énergie dissipée et sur le critère de rupture. La méthode implémentée est une généralisation du schéma de Duvaut-Lions [209]. Chaque variable d'endommagement est remplacée par son équivalent régularisé de la façon suivante :

$$\dot{D}_{m,visq} = \frac{1}{\mu} (D_m - D_{m,visq}) \quad (7.1)$$

$$\dot{D}_{c,visq} = \frac{1}{\mu} (D_c - D_{c,visq}) \quad (7.2)$$

où  $\mu$  est le temps caractéristique,  $D_m$  et  $D_c$  sont les valeurs des variables monotone et cyclique instantanées, et  $D_{m,visq}$  et  $D_{c,visq}$  sont les variables monotone et cyclique régularisées.

Cette modification consiste donc en l'introduction d'un temps caractéristique  $\mu$  qui permet d'adoucir une modification éventuellement trop brutale de ces variables entre deux incréments successifs. Le temps caractéristique n'a pas de sens physique, sa finalité est principalement numérique. D'un côté, ce temps doit être suffisamment petit, afin de ne pas induire une énergie dissipée visqueuse trop importante. De l'autre côté, ce temps doit être suffisamment grand pour améliorer la convergence des simulations. Pour l'ensemble de ces raisons, nous avons testé une régularisation visqueuse du modèle avec un temps caractéristique compris dans l'intervalle  $10^{-6}$  -  $10^{-3}$  secondes, et nous avons vérifié son effet sur une variable d'endommagement  $D$ .

La Figure 7 - 2 montre l'effet de la régularisation visqueuse proposée pour une variation donnée de la variable d'endommagement  $D$  dans le temps. Plus précisément, on impose ici une variation de la variable d'endommagement constituée de deux rampes de différent pente (de  $D = 0$  à  $D = 0.2$  en 20 incréments de temps et de  $D = 0.2$  à  $D = 0.5$  en 10 incréments) et une marche (de  $D = 0.5$  à  $D = 0.8$  dans un seul incrément de temps). Il apparaît que, pour un temps caractéristique trop petit ( $\mu = 10^{-5}$  secondes ou moins), l'effet de la régularisation sur le calcul des variables d'endommagement est négligeable. Un temps caractéristique  $\mu = 10^{-4}$  s a un faible effet sur les changements de pente, et en particulier sur les sauts de la valeur de  $D$ . Par contre, le temps  $\mu = 10^{-3}$  permet une atténuation plus importante des changements de la valeur de  $D$  en toutes circonstances.

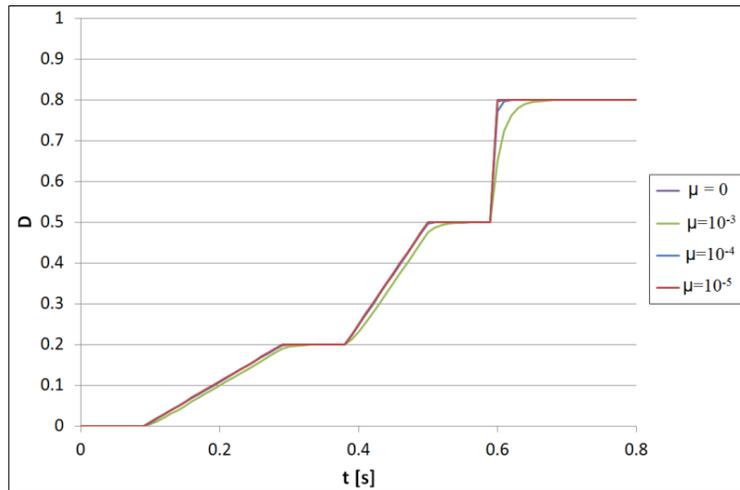


Figure 7 - 2 : Effet de la régularisation visqueuse proposée pour une variation aléatoire de la variable d'endommagement dans le temps

Par ailleurs, avec la régularisation proposée, une énergie visqueuse est dissipée, dont la valeur doit être prise en compte lors de l'identification de l'énergie de rupture. Cette modification n'affecte toutefois pas l'admissibilité thermodynamique du modèle : comme l'énergie dissipée augmente, on conserve la positivité de la puissance dissipée au cours du processus (équation 5.6). Nous avons déterminé l'évolution de l'énergie dissipée lors du calcul pour les variables d'endommagement avec et sans la régularisation visqueuse, sans observer des différences significatives. Nous pouvons donc affirmer que la correction appliquée ne modifie pas l'énergie dissipée totale lors du calcul, même pour la valeur la plus élevée du temps caractéristique. Les

états de déformation et de contraintes ainsi que les vitesses de propagation sont aussi inchangés par rapport au calcul réalisé sans la régularisation visqueuse. L'effet de la modification sur la convergence des calculs semble cependant être limité. Nous avons alors gardé une régularisation visqueuse modérée, de  $10^{-4}$  secondes, qui n'a donc pas d'influence sur les résultats numériques, mais dans certaines conditions peut aider la convergence. En effet, une valeur plus élevée, par exemple  $10^{-3}$  secondes, pourrait nuire à la détermination des vitesses de propagation, à cause d'un temps plus élevé pour atteindre la valeur critique des variables d'endommagement (0.999).

En raison de la complexité du modèle il est inenvisageable de résoudre les problèmes de convergence pour toutes les conditions de diffusion et de chargement possibles. Ces problèmes sont inhérents aux deux sous-routines développées, UMAT et UEL. Dans la suite, nous montrerons que les corrections du code et les modifications au modèle (en particulier géométrie et régularisation visqueuse) nous ont permis d'élargir l'intervalle de convergence, jusqu'à une certaine limite qui se réduit dans les cas les plus extrêmes de pression et chargement mécanique.

### 7.1.3 Diffusion de l'hydrogène

Avant de présenter les résultats des simulations de propagation de fissures, nous allons présenter ici la diffusion de l'hydrogène dans le matériau modélisée avec la sous-routine UMAT présentée dans le chapitre 5, en utilisant la loi de diffusion de Krom [55], présentée dans le paragraphe 1.4. Nous montrerons l'évolution de la diffusion en pointe de fissure à travers les profils de concentration, et des calculs de perméation sur une plaque soumise à un chargement mécanique. Ces observations permettront, dans la suite, d'expliquer certains résultats sur les vitesses de propagation que nous allons montrer dans les paragraphes suivantes.

L'influence de la pression et de la fréquence de chargement cyclique sur la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure examinée par Moriconi est montrée dans la figure 5.16. Pour le modèle développé, et avec les modifications décrites dans les paragraphes précédents (modifications de la géométrie et du maillage, régularisation visqueuse), nous avons répété les simulations avec le coefficient de diffusion  $D_L=10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s, utilisé entre autres par Moriconi [12] et Olden [43]. La Figure 7 - 3 présente la cartographie de la concentration totale d'hydrogène dans les éléments de bulk en pointe de fissure pour une fréquence de 20 Hz et des pressions de 0.09 et 9 MPa, après 250 cycles de chargement ( $\Delta K=10$  MPa x m<sup>1/2</sup>). La condition aux limites en termes de concentration d'hydrogène imposée sur quelques nœuds en fond de fissure est calculée avec la loi de Sievert (équation 1.3), et correspond à  $S = 1.963 \times 10^{12}$  et  $1.963 \times 10^{13}$  atomes/m<sup>3</sup> respectivement ( $S$  est représenté par  $NT11$  en figure). Les lignes colorées sur la figure représentent alors des profils d'iso-concentration totale en hydrogène.

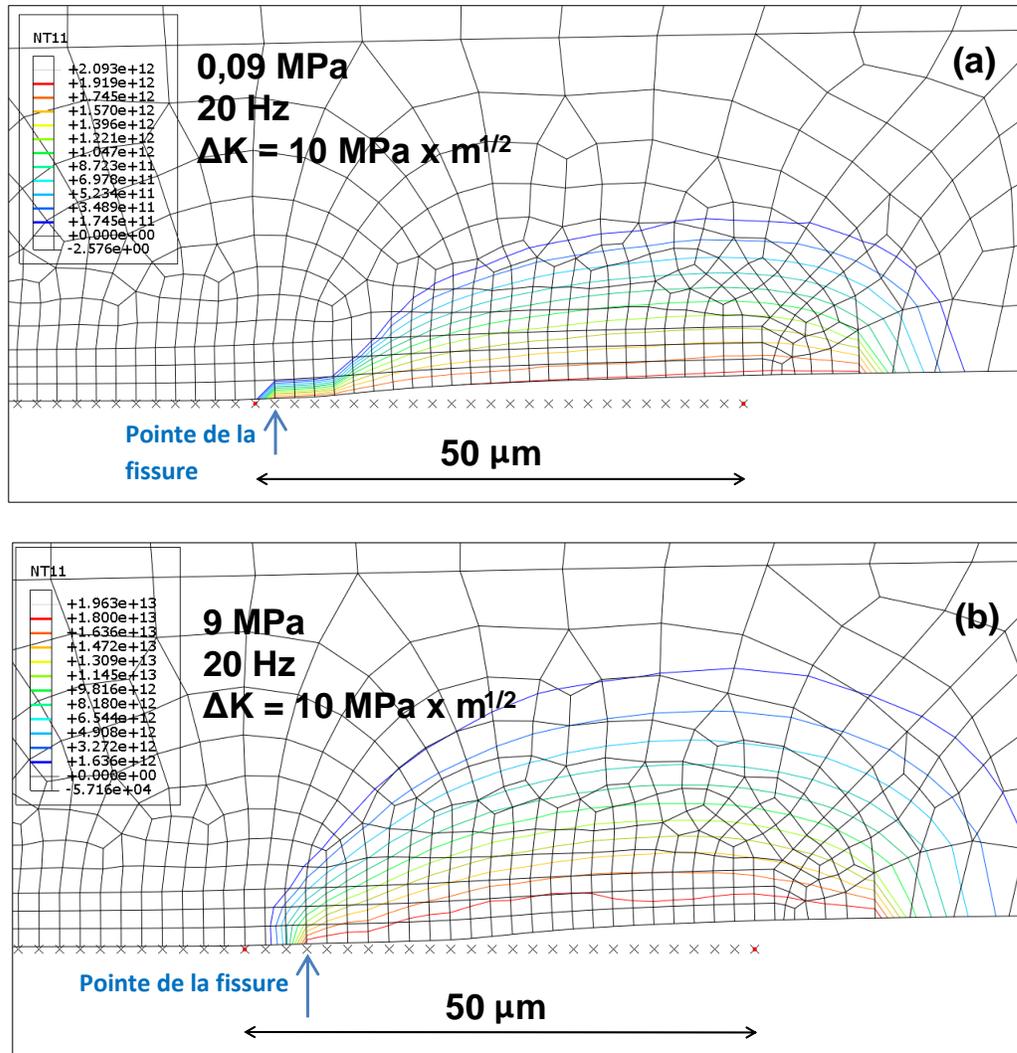


Figure 7 - 3 : Cartographie de la concentration totale d'hydrogène dans les éléments de bulk en pointe de fissure, après 250 cycles de chargement, pour les pressions de 0.09 MPa (a) et 9 MPa (b)

On peut observer que la distance de pénétration de l'hydrogène est beaucoup plus élevée pour la pression de 9 MPa (Figure 7 - 3b). En particulier, pour cette pression, une concentration en hydrogène importante (suffisante pour réduire l'énergie de rupture de la TSL) influence deux éléments cohésifs au-delà de la pointe de la fissure, contre un seul élément pour la pression plus faible. Par contre, sur la figure on peut observer que la longueur de fissure est similaire dans les deux cas, ce qui signifie que les vitesses de propagation de la fissure sont similaires (comme on verra plus en détail dans le prochain paragraphe). Ceci peut être expliqué en examinant l'évolution de la TSL avec le chargement cyclique et avec le taux de recouvrement en hydrogène. Dans ces conditions de calcul, la réduction de l'énergie de rupture engendrée par le chargement cyclique (Figure 7 - 4a) est beaucoup plus importante que celle liée à l'influence de l'hydrogène sur la TSL (Figure 7 - 4b), qui intervient seulement dans la dernière partie de l'endommagement de l'élément, à cause de la diffusion limitée. La Figure 7 - 5 montre la déformation plastique calculée après 20 secondes de calcul (400 cycles), pour une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (dans

la figure SDV10 représente cette déformation). On peut voir que l'endommagement de l'élément cohésif contrôlé par la déformation commence bien avant l'arrivée de l'hydrogène (qui influence un ou deux éléments au-delà de la pointe de la fissure), et donc l'effet de réduction de l'énergie de cohésion lié à la concentration de l'hydrogène est très limité.

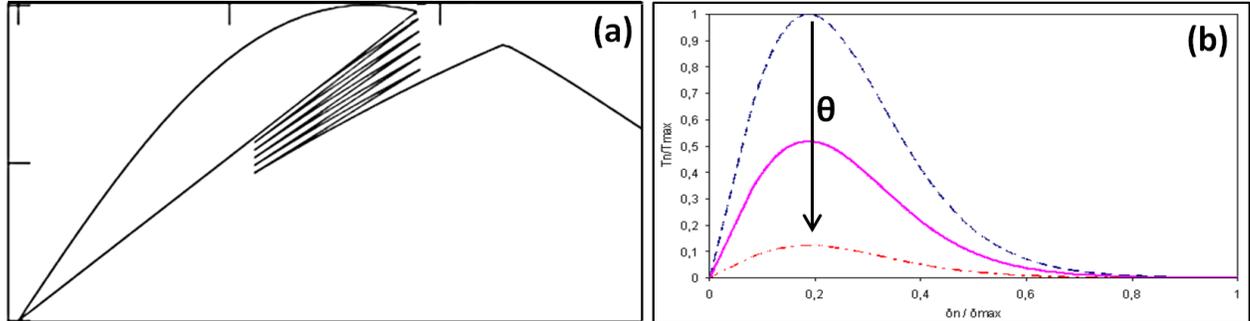


Figure 7 - 4 : Evolution de la TSL avec le chargement cyclique (a) et avec le taux de recouvrement en hydrogène (b)

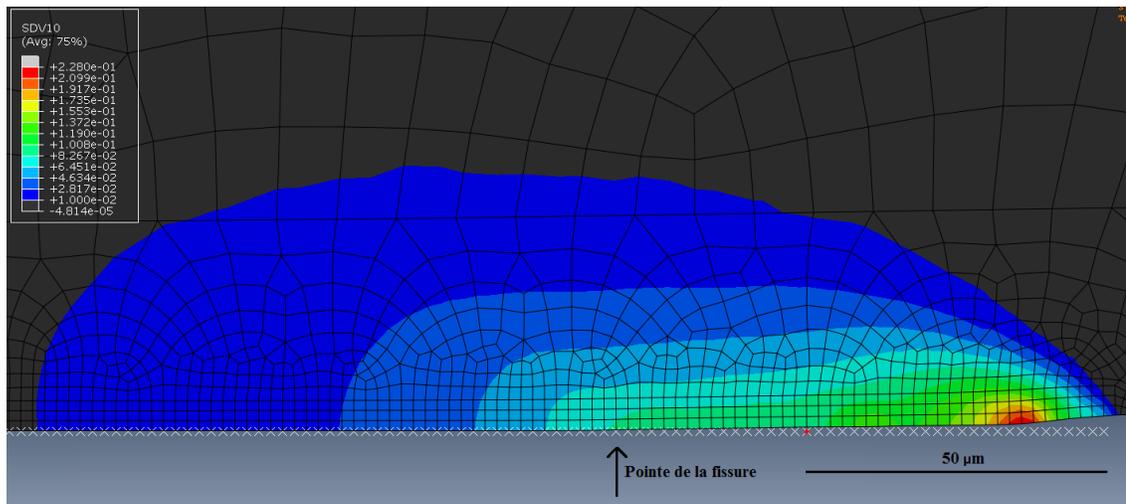


Figure 7 - 5 : Déformation plastique cumulée calculée (SDV10) après 20 secondes de calcul, pour une fréquence de 20 Hz et une valeur de  $\Delta K=10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$

La Figure 7 - 6 montre les iso-contours de concentration totale de l'hydrogène autour de la fissure dans le cas d'une faible pression d'hydrogène et d'une faible fréquence de chargement. Dans ce cas, l'hydrogène peut diffuser jusqu'à trois éléments cohésifs en avant de la pointe de la fissure, tandis que l'état de contrainte et de déformation plastique est inchangé. Par conséquent, cette diffusion de l'hydrogène peut causer une augmentation significative de la vitesse de propagation, comme on le verra dans le paragraphe suivant.

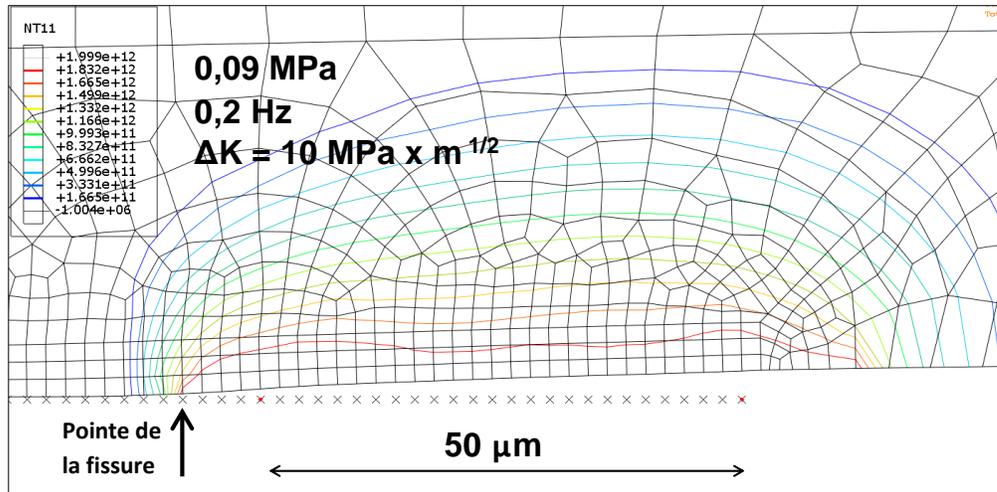


Figure 7 - 6 : Diffusion de l'hydrogène autour de la fissure dans le cas d'une faible pression et à faible fréquence de chargement

Pour faciliter la compréhension des résultats des calculs de propagation de fissure sous hydrogène que nous montrerons dans les paragraphes suivants, nous avons réalisé des calculs de perméation de l'hydrogène dans différents conditions en termes de pression externe, de coefficient de diffusion, de fréquence de chargement mécanique, et de temps totale de diffusion.

L'augmentation du coefficient de diffusion permet à l'hydrogène de diffuser plus rapidement dans le matériau. Son effet est similaire à celui de la réduction de la fréquence (et donc de l'augmentation du temps d'exposition). La concentration d'hydrogène imposée sur la surface augmente en fonction de la racine carrée de la pression. Nous avons réalisé un calcul de diffusion pour un essai de perméation à travers une plaque d'épaisseur de 20 μm (dix éléments de 2 μm), constituée d'éléments de bulk, modélisés à l'aide de la subroutine UMAT présentée dans le chapitre 5, pour représenter l'écrouissage cinématique non linéaire de l'acier 15-5PH. Nous avons en outre utilisé la loi de diffusion couplée de Krom, présentée dans le paragraphe 5.2.3, qui sera utilisée ensuite dans les calculs de propagation de fissures présentés dans les paragraphes suivants. La plaque est soumise à un chargement cyclique en direction axiale ( $R = 0.7$ ,  $f = 20$  Hz,  $\sigma_{max} = 1100$  MPa) pendant l'application d'une concentration d'hydrogène équivalente à 9 MPa sur un côté de l'éprouvette. Pour le premier calcul, nous avons imposé un coefficient de diffusion  $D_L = 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s, et un temps de diffusion  $t = 10$  s (Figure 7 - 7a). Nous avons aussi calculé la diffusion dans la même plaque après un temps  $t = 100$  s. Enfin, la Figure 7 - 7b illustre la diffusion de l'hydrogène après un temps  $t = 10$  s, cette fois avec un coefficient de diffusion  $D_L = 10^{-11}$  m<sup>2</sup>/s.

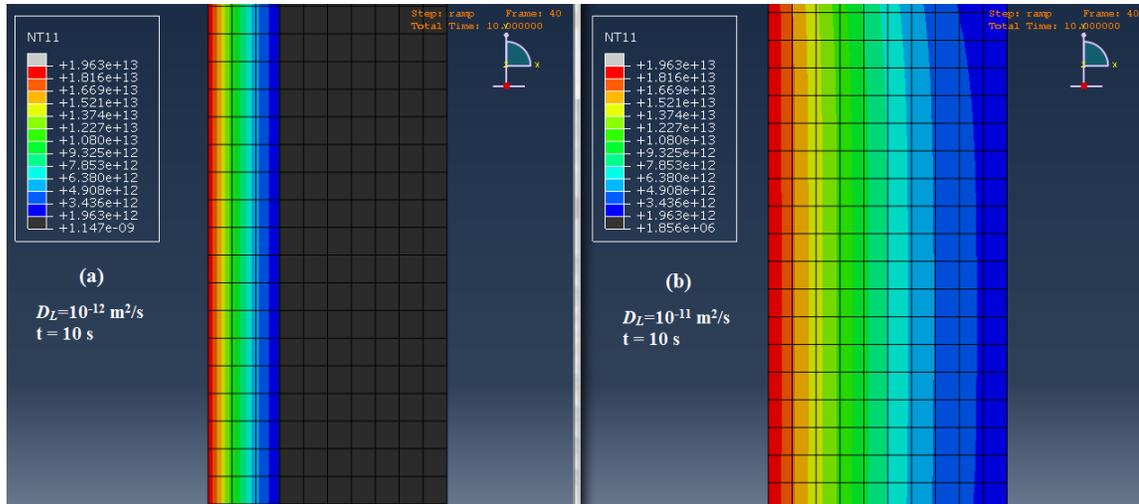


Figure 7 - 7 : Diffusion de l'hydrogène après un temps de diffusion  $t = 10$  s, pour un coefficient de diffusion  $D_L=10^{-12}$   $m^2/s$  (a) et un coefficient de diffusion  $D_L=10^{-11}$   $m^2/s$  (b)

La Figure 7 - 7 montre un effet important du coefficient de diffusion sur la pénétration de l'hydrogène dans le matériau. Cet effet est similaire à celui d'une augmentation du temps d'exposition du même facteur. La Figure 7 - 8 présente quant à elle l'évolution de la concentration d'hydrogène en fonction de la distance à partir de la surface exposée à l'hydrogène, dans la plaque présentée en Figure 7 - 7, pour les trois conditions évoquées pour la loi de diffusion de Krom ( $D_L = 10^{-12}$   $m^2/s$  et temps de 10 et 100 secondes, et  $D_L = 10^{-11}$   $m^2/s$  et temps de 10 secondes), comparés à la diffusion dans la même plaque calculée avec la seule loi de Fick (courbe en violet).

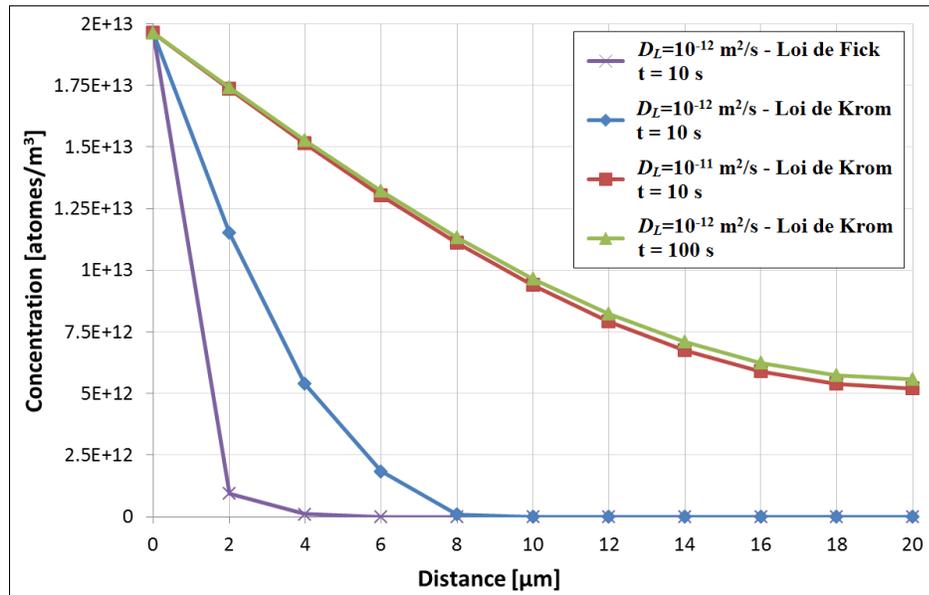


Figure 7 - 8 : Evolution de la concentration totale d'hydrogène en fonction de la distance à partir de la surface exposée à l'hydrogène

Nous constatons que la diffusion au sein du matériau est très sensible à l'augmentation du temps d'exposition et du coefficient de diffusion. De plus, l'augmentation du coefficient de diffusion d'un facteur X a le même effet d'un temps d'exposition X fois plus élevé. Olden et al. [43] ont réalisé des calculs de diffusion pour différents aciers à haute résistance, en utilisant la loi de diffusion implémentée dans Abaqus, qui tient compte des gradients de concentration et de contrainte hydrostatique (similaire à la loi de Krom). Ils ont observé la distribution de l'hydrogène dans une plaque épaisse et en pointe de fissure. Ils montrent une influence du temps d'exposition sur la diffusion dans la plaque épaisse, qualitativement proche de notre résultat (Figure 7 - 9a). Par contre, en pointe de fissure, ils observent une accumulation de l'hydrogène dans la région de contrainte hydrostatique maximale, mais après un temps très long (Figure 7 - 9b).

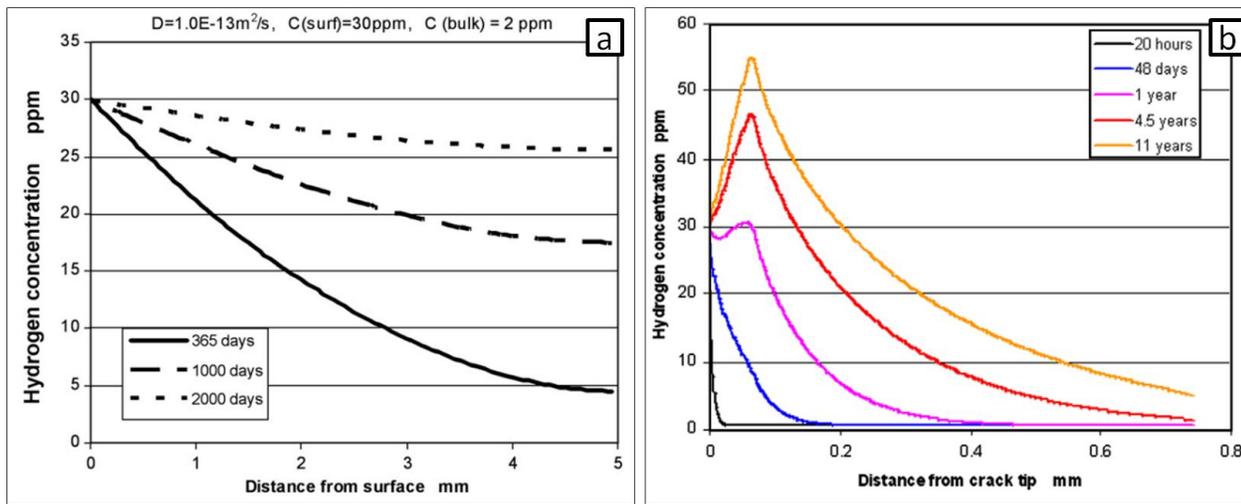


Figure 7 - 9 : Calculs de diffusion réalisés par Olden et al. [43]. Concentration d'hydrogène dans une plaque épaisse (a), et en pointe de fissure (b)

En conclusion, ces simulations de diffusion de l'hydrogène dans le modèle, qui suit la loi de Krom, nous permettent d'estimer la taille de la zone affectée par l'hydrogène en pointe de fissure, et de comprendre quelle est l'influence de certains paramètres sur la diffusion. On pourrait connaître précisément la valeur du coefficient de diffusion effectif, pouvant être par ailleurs mesuré expérimentalement à l'aide d'essais de perméation électrochimique [103,160]. C'est précisément ce que nous avons commencé dans le cas du fer pur, pour différentes structures de déformation cyclique. Toutefois, la pointe de fissure se caractérise par un état complexe de déformation plastique et de contrainte, avec des forts gradients, ce qui nous empêche de connaître exactement la diffusion de l'hydrogène à partir des résultats de perméation. Le modèle pourrait alors nous aider à comprendre ces mécanismes de diffusion, par exemple en mettant en cause les composantes de la loi de Krom (que nous discuterons dans le paragraphe 7.4) afin de se rapprocher aux résultats expérimentaux. En effet, on pourrait imaginer un gradient de  $D$  près de la pointe de la fissure. Dans le paragraphe 7.4 nous allons montrer l'importance du terme de diffusion due à la contrainte hydrostatique, qui permettra de représenter l'augmentation de la diffusion à proximité de la pointe de la fissure.

## 7.2 Simulation de la propagation de fissures de fatigue

Ce paragraphe présente les résultats de la simulation de propagation de fissures dans un environnement inerte et sous hydrogène, et la comparaison avec les résultats expérimentaux. En particulier, sous hydrogène, nous analyserons l'influence de la pression, de la fréquence du chargement cyclique, et de la valeur du coefficient de diffusion. Ensuite, nous analyserons l'effet de l'hydrogène sur la propagation d'une fissure sous chargement statique.

### 7.2.1 Simulation de la propagation de fissures de fatigue dans un environnement inerte

Nous avons réalisé une série de simulations de propagation de fissure de fatigue en l'absence d'hydrogène à l'aide du modèle utilisant un nouveau maillage et intégrant les modifications présentées dans le paragraphe précédent. Nous avons utilisé les paramètres de la loi de traction-séparation identifiés par Moriconi (présentés dans le paragraphe 7.1.1).

Pour chaque valeur de  $\Delta K$  (à  $R=0.7$ ), on détermine par simulation l'avancée de la fissure en fonction du nombre de cycles, dont on déduit la vitesse de propagation  $da/dN$  après le régime transitoire initial, c'est-à-dire lorsque la vitesse de propagation est stabilisée. La série de simulations a été réalisée pour une fréquence de sollicitation cyclique de 20 Hz. La Figure 7 - 10 montre les résultats des simulations de propagation de fissures, comparés aux résultats expérimentaux sur l'acier 15-5PH sous azote, air, et hydrogène gazeux à pressions faible et élevée (ces résultats ont été discutés dans le chapitre 6).

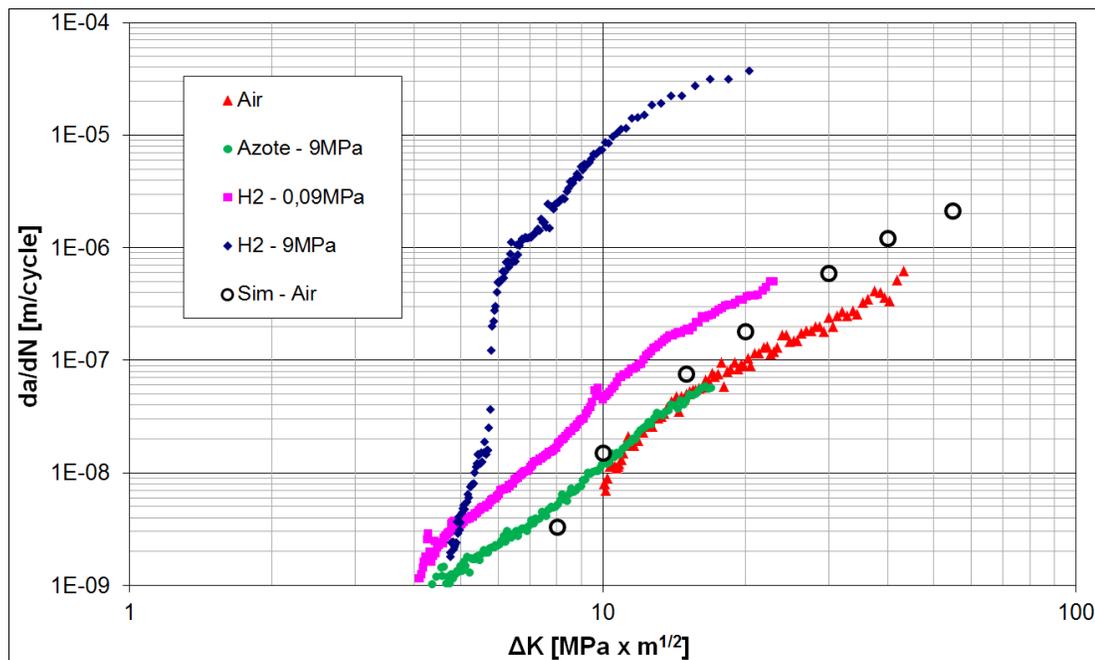


Figure 7 - 10 : Comparaison des vitesses de propagation simulées en environnement inerte avec les résultats expérimentaux sur le 15-5PH

Les paramètres de la TSL ont été calibrés sur un seul point d'une courbe de propagation à l'air ( $da/dN - \Delta K$ ), pour  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . On remarque que les résultats des simulations sont très proches des vitesses réelles sous air et sous azote pour cette valeur. En absence d'hydrogène, nous avons observé une bonne répétabilité des résultats numériques, et une augmentation des vitesses de propagation avec la valeur de  $\Delta K$ , en l'absence de problèmes de convergence jusqu'à  $\Delta K = 55 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . La simulation ne présente pas de problèmes de convergence pour des valeurs de  $\Delta K$  faibles. On peut en outre observer que la fissure avance lentement pour  $\Delta K = 8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , qui représente la limite inférieure pour la propagation de la fissure sous environnement inerte, en dessous de laquelle la charge maximale est si basse qu'elle ne suffit plus à faire évoluer l'endommagement cyclique (voir les figures 5.4 et 5.7), de sorte qu'on reste dans la partie linéaire de la TSL. L'élément cohésif présente alors un comportement élastique. Cette valeur de  $\Delta K$  peut alors être vue comme le seuil de propagation sous environnement inerte. Dans le futur on pourra modifier les paramètres de la TSL afin de permettre une propagation de la fissure jusqu'à des valeurs de  $\Delta K$  plus faibles, afin de se rapprocher de la valeur de seuil réel (environ  $2.5 - 3 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Cette modification devra être conçue de manière à ne pas modifier l'énergie de rupture, et réduire la contrainte maximale de la TSL, par exemple en réduisant la rigidité initiale  $K_n$  et le seuil initial d'endommagement cyclique  $C_c$ .

Des simulations ont été réalisées pour une fréquence de chargement cyclique de 0.2 Hz, sans observer d'influence sur les cinétiques de propagation simulées, ce qui est cohérent avec les principes du modèle (l'endommagement des éléments cohésifs est décrit par un formalisme indépendant du temps).

## 7.2.2 Simulation de la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène

Le paragraphe précédent a montré que le modèle peut prédire des vitesses de propagation sous atmosphère inerte en accord avec les résultats expérimentaux. Nous allons ici montrer les résultats des simulations de propagation de fissures de fatigue en présence d'hydrogène gazeux. Les simulations sont réalisées pour différentes valeurs de  $\Delta K$ , de pression d'hydrogène, de fréquence de chargement cyclique, et du coefficient de diffusion.

Nous allons déterminer les vitesses de propagation d'une fissure en présence d'une concentration d'hydrogène fixée en pointe de fissure, dans un matériau non pré-chargé en hydrogène. La concentration initiale est alors imposée à zéro sur tous les nœuds de l'éprouvette. La Figure 7 - 11a montre un grossissement sur la pointe de la fissure (indiquée par la flèche blanche) à l'instant initial. Pour représenter l'atmosphère d'hydrogène gazeux, une concentration d'hydrogène constante, calculée à l'aide de la loi de Sievert, est imposée sur la surface de l'éprouvette en fond de fissure. Cette concentration est affectée à quelques nœuds de la pointe de la fissure, à partir de la fin du chargement monotone qui mène à la charge moyenne du chargement cyclique (Figure 7 - 11b). Le chargement cyclique est ensuite appliqué. L'hydrogène diffuse dans les éléments de bulk suivant la loi de Krom, tandis qu'il diffuse (instantanément) dans les éléments cohésifs

seulement lorsqu'ils sont rompus. La Figure 7 - 11c montre la diffusion progressive de l'hydrogène au sein du matériau après 100 cycles de chargement cyclique pour une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et  $R=0.7$ . On peut voir l'avancement de la fissure et la diffusion instantanée dans les éléments cohésifs lors de la rupture (concentration maximale sur tous les éléments cohésifs rompus). La différente pénétration de l'hydrogène dans le sillage est liée à un temps de diffusion différent, par exemple en pointe de fissure on a une concentration imposée d'hydrogène depuis quelques secondes (environ 5 secondes sur le premier élément cohésif rompu, 10 secondes sur le deuxième etc.), tandis qu'au début de la fissure la concentration d'hydrogène a été imposée pour toutes les 100 secondes. Dans le cas d'une fissure stationnaire, par contre, la diffusion est égale dans toutes les directions.

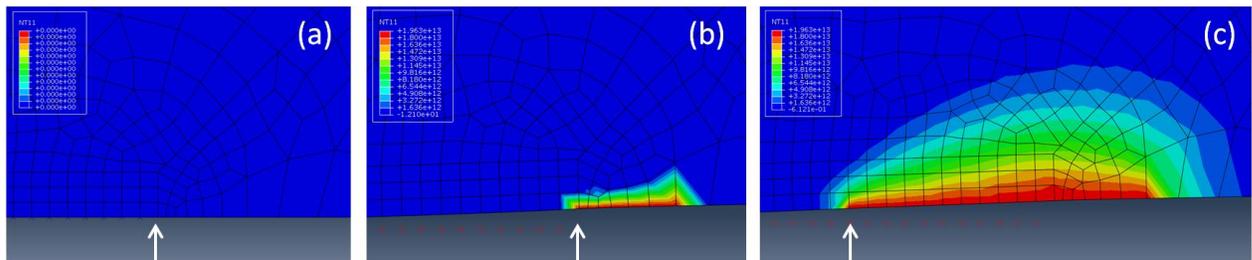


Figure 7 - 11 : Représentation de la concentration totale d'hydrogène (NT11) en pointe de fissure au début du calcul (a), à la fin du chargement monotone (b), et après 100 cycles de chargement cyclique (c)

### Influence de la pression

La Figure 7 - 12 montre les valeurs des vitesses de propagation  $da/dN$  obtenues pour différentes concentrations d'hydrogène (correspondant à des pressions de 0.09 MPa à 40 MPa), et pour différentes valeurs de  $\Delta K$  (dans l'intervalle de convergence) pour une fréquence de 20 Hz et un coefficient de diffusion  $D_L = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ , comparés aux résultats expérimentaux obtenus à 20 Hz.

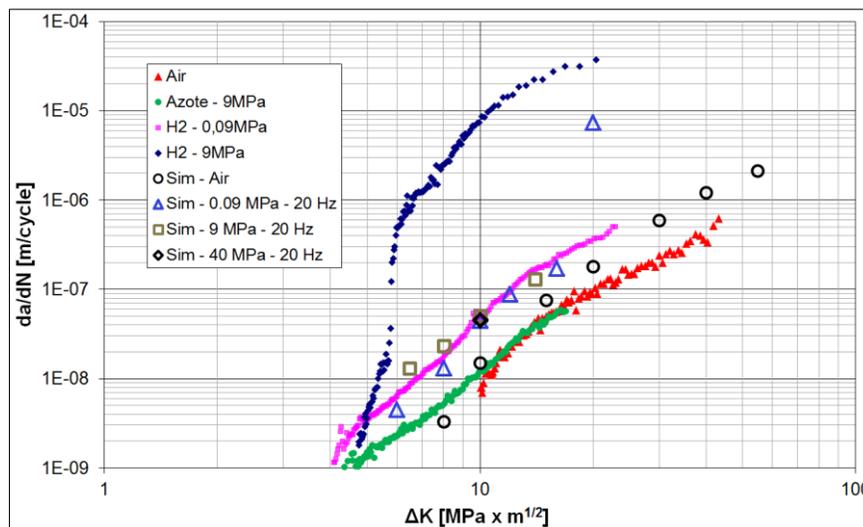


Figure 7 - 12 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes concentrations d'hydrogène, comparées aux résultats expérimentaux. Toutes les vitesses ont été obtenues pour une fréquence de chargement de 20 Hz

L'intervalle de  $\Delta K$  dans lequel nous avons pu obtenir des résultats valides (c'est-à-dire assurant une propagation de la fissure régulière avec des valeurs constantes du temps d'incrément, de la régularisation visqueuse etc.) est plutôt large. La valeur de  $\Delta K = 16 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  représente une limite supérieure pour la convergence des calculs. Nous avons cependant obtenu un résultat pour  $\Delta K = 20 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , mais en utilisant des valeurs de \*Controls doublés et une valeur de temps caractéristique pour la régularisation visqueuse de  $10^{-6}$  s, qui incitent à regarder ce résultat avec circonspection (triangle bleu à  $\Delta K = 16 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  et  $da/dN = 7 \times 10^{-6}$  m/cycle). Les paramètres de contrôle sont utilisés pour définir les tolérances pour les équations de champ (« field equations »). Les tolérances utilisées par défaut permettent d'obtenir une solution très précise. Cela n'empêche toutefois pas qu'une réduction de ces tolérances puisse permettre de maintenir une précision de la solution satisfaisante, tout en améliorant la convergence. La vitesse de propagation obtenue ne paraissant toutefois pas en accord avec les autres résultats, cette simulation ne sera pas considérée dans la suite.

Les résultats montrent que le modèle prédit effectivement un abaissement de la résistance à la fissuration en présence d'hydrogène, et que la vitesse d'avancement est sensible au niveau de  $\Delta K$ . L'augmentation des vitesses par rapport à ce qu'on observe en l'absence d'hydrogène est plus élevée à faible  $\Delta K$ . En particulier, les vitesses sont plus élevées d'un facteur environ 2 à  $\Delta K = 15 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , environ 3 à  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , et un facteur 5 - 6 à  $\Delta K = 8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , tandis que la fissure ne peut pas avancer en l'absence d'hydrogène pour  $\Delta K < 8 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . A haute pression les vitesses de propagation sont identiques à celles obtenues à faible pression pour une valeur de  $\Delta K$  élevée. Par contre, pour une valeur de  $\Delta K < 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , les vitesses calculées sont légèrement plus élevées. Il semble qu'à fort  $\Delta K$  on assiste à une saturation de l'effet de la pression.

En général, on constate que l'effet de la pression d'hydrogène sur les vitesses de propagation est faible. En effet, comme nous avons observé dans le paragraphe 7.1.3, la diffusion de l'hydrogène au-delà de la pointe de fissure est limitée, ce qui réduit l'influence de l'hydrogène sur l'endommagement de l'élément cohésif à longue distance. La réduction de l'énergie de rupture par chargement cyclique est, dans ce cas, prédominante. Ceci explique le fait qu'on observe des vitesses similaires pour les différentes pressions d'hydrogène, et seulement légèrement plus élevées que celles obtenues avec une concentration nulle.

Les pressions considérées pour les premiers calculs correspondent aux pressions utilisées lors des essais expérimentaux. Afin de comprendre le comportement du modèle dans des cas plus extrêmes, nous avons réalisé des simulations avec des concentrations très basses et très élevées, pour la valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Un calcul lancé avec une concentration d'hydrogène 10 fois plus faible que la plus petite utilisée dans les calculs précédents, correspondant à une pression  $P = 0.0009 \text{ MPa}$ , prédit une vitesse de propagation  $da/dN = 2 \times 10^{-8}$  m/cycle, très proche du résultat obtenu en l'absence d'hydrogène. Un calcul avec une concentration correspondant à la pression de 4000 MPa conduit à une vitesse de propagation  $da/dN = 4 \times 10^{-8}$  m/cycle, très proche des résultats obtenus pour des pressions plus faibles. En effet, bien que la

concentration d'hydrogène sur la surface de l'éprouvette soit 10 fois plus élevée par rapport à la plus élevée des calculs précédents (40 MPa), la diffusion de l'hydrogène est encore limitée à deux éléments au-delà de la pointe de la fissure (Figure 7 - 13).

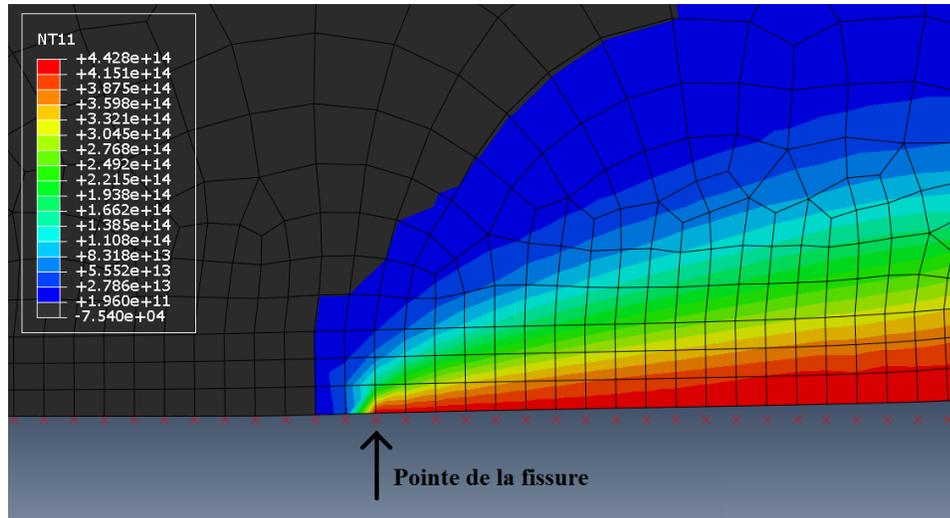


Figure 7 - 13 : Diffusion de l'hydrogène pour la simulation sous 4000 MPa d'hydrogène. La concentration est très élevée près de la surface, mais la diffusion est encore limitée à deux éléments au-delà de la pointe de la fissure

En conclusion, les vitesses de propagation à fort  $\Delta K$  ( $\geq 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) sont certes plus élevées sous hydrogène que sous air, mais uniquement d'un facteur de 2 à 3. Cette différence est plus marquée à faible  $\Delta K$ , et, dans ces mêmes conditions on note également une légère influence de la pression d'hydrogène. Ceci peut être dû à la compétition entre endommagement de l'élément cohésif par le chargement cyclique et par l'hydrogène (voir Figure 7 - 4) : à forte valeur de  $\Delta K$ , l'endommagement induit par le chargement mécanique est prédominant, ce qui rapproche les vitesses sous hydrogène de celles obtenues sans hydrogène. A faible  $\Delta K$ , l'effet de la présence d'hydrogène sur la réduction de l'énergie de rupture est plus important, ce qui amplifie l'écart entre les vitesses sans hydrogène, les vitesses sous faible pression, et les vitesses sous forte pression d'hydrogène.

### ***Influence de la fréquence de chargement cyclique***

La Figure 7 - 14 présente l'influence de la fréquence de chargement cyclique sur les résultats des simulations. Une série de simulation a été réalisée pour une fréquence de 0.2 Hz et pour les pressions de 0.09 MPa et 9 MPa d'hydrogène, pour montrer l'évolution de l'effet de la pression à une fréquence de chargement plus faible.

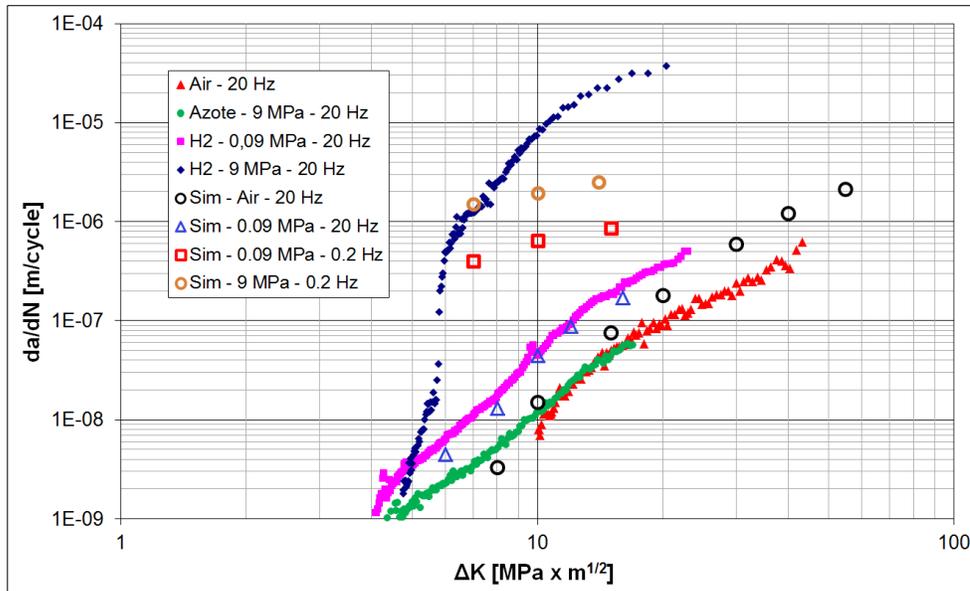


Figure 7 - 14 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes fréquences de chargement et différentes concentrations d'hydrogène, comparées aux résultats expérimentaux

Etant donné que la concentration augmente avec la racine de la pression, augmenter le temps d'exposition du même facteur que la pression d'hydrogène (dans ce cas un facteur 100) permet à l'hydrogène d'avancer sur plusieurs éléments en pointe de fissure (distance de pénétration et taux de recouvrement augmentés), et donc de réduire davantage l'énergie de séparation des éléments cohésifs. En fait, on peut considérer en première analyse qu'un temps de diffusion 100 fois plus élevé a un effet beaucoup plus important d'une pression 100 fois plus élevée (concentration 10 fois plus élevée).

Il en résulte des vitesses de propagation beaucoup plus élevées par rapport aux simulations en absence d'hydrogène, parce que, dans ce cas, la réduction de l'énergie de rupture induite par l'hydrogène est plus importante. En particulier, l'évolution de la valeur de  $\theta$  sur l'élément cohésif en pointe de fissure vers une valeur critique (qui cause la rupture) est similaires aux essais à fréquence élevée, et donc nécessite moins de cycles pour la propagation. De plus, compte tenu de ces considérations, l'influence de la pression d'hydrogène est beaucoup plus importante à faible fréquence, comme montré sur la Figure 7 - 14. Par contre, l'influence de l'hydrogène étant plus importante par rapport à l'endommagement lié au cyclage, les courbes de propagation à faible fréquence sont moins sensibles à la variation de  $\Delta K$  et présentent une pente plus faible. Ceci nous amène à envisager la possibilité d'une propagation sous chargement statique, dans laquelle l'hydrogène qui diffuse en pointe de fissure réduit l'énergie de cohésion des éléments cohésifs, jusqu'à la rupture. Dans le prochain paragraphe on présentera les résultats des simulations réalisées avec un chargement statique en présence d'hydrogène, que nous confronterons aux données expérimentales montrées dans le paragraphe 6.2.4.

### Influence du coefficient de diffusion

La Figure 7 - 15 présente l'influence du coefficient de diffusion  $D_L$  sur la simulation de la propagation de fissures de fatigue. Tous les calculs ont été réalisés à la fréquence de chargement de 20 Hz et sous une pression de 0.09 MPa (en raison de l'intervalle de convergence plus large).

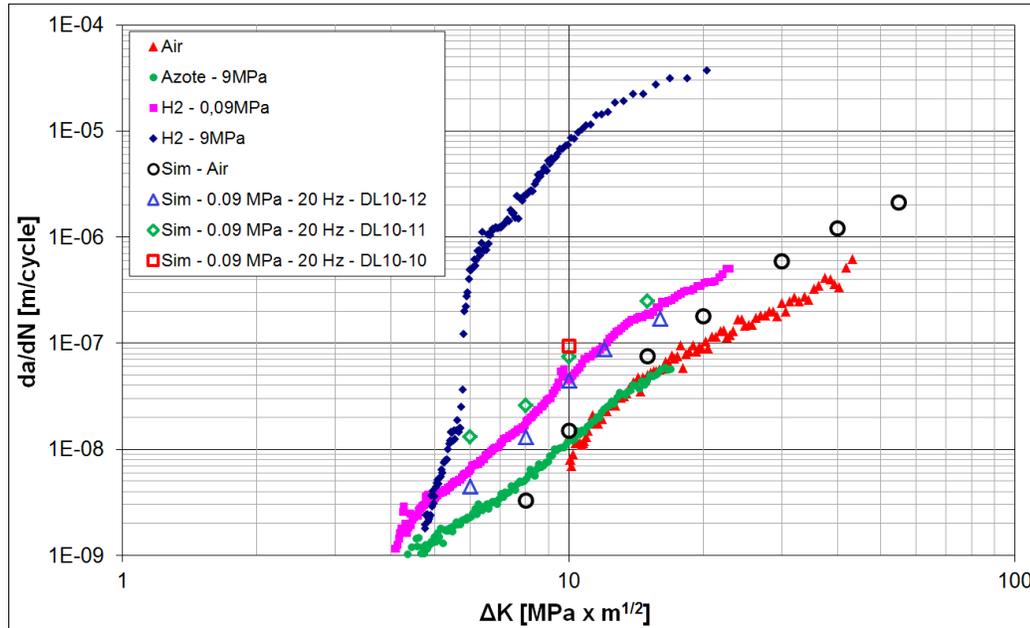


Figure 7 - 15 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes valeurs du coefficient de diffusion, à faible pression d'hydrogène et fréquence de chargement élevée, comparées aux résultats expérimentaux

L'augmentation du coefficient de diffusion permet d'obtenir des vitesses de propagation légèrement plus élevées à cette pression d'hydrogène et pour cette fréquence dans tout l'intervalle de  $\Delta K$  testé (qui coïncide avec l'intervalle de convergence). Comme montré dans le paragraphe sur la perméation, l'augmentation du coefficient de diffusion permet d'augmenter considérablement la quantité d'hydrogène qui pénètre en pointe de fissure. Ceci se traduit par des vitesses plus élevées : ainsi, à  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  on observe un facteur 2 sur les vitesses pour  $D_L = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$  (par rapport à  $D_L = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ) et un facteur 2.5 pour  $D_L = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ . Par contre, les vitesses sont beaucoup plus faibles que celles obtenues pour une réduction de la fréquence de chargement, ce qui suggère qu'à fréquence élevée, même dans le cas d'une forte diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure, la réduction de l'énergie de rupture de l'élément cohésif par chargement cyclique est prédominante.

Comme pour l'effet de la pression, on observe également une augmentation des vitesses de propagation plus importante à faible  $\Delta K$ . Ceci est probablement dû à la même raison, c'est-à-dire que l'endommagement de l'élément cohésif par chargement cyclique est plus important à  $\Delta K$  élevé, par contre, à faible  $\Delta K$ , le poids relatif de la présence de l'hydrogène sur la réduction de l'énergie de rupture est plus important.

Pour conclure, les résultats numériques montrent bien une dégradation de la résistance à la fissuration en présence d'hydrogène. La diffusion de l'hydrogène a un rôle fondamental sur les vitesses de propagation simulées. Le modèle est capable de prédire des vitesses de propagation très élevée sous hydrogène à faible fréquence de chargement, via une diffusion plus importante en pointe de fissure, comme observée dans le paragraphe précédent. Par contre, dans certains cas les vitesses n'augmentent que peu, en particulier à fort  $\Delta K$ , où la rupture de l'élément est principalement liée à l'endommagement induit par le chargement mécanique. Ces considérations suggèrent une piste d'amélioration du modèle via une modification de la loi de Krom, afin de permettre une diffusion plus importante sur les éléments cohésifs en pointe de fissure, et donc d'augmenter l'endommagement de la TSL dû à la présence d'hydrogène. Le paragraphe 7.4 expose une proposition de modification de la loi de Krom en ce sens.

### **7.2.3 Simulation de la propagation de fissures sous hydrogène sous chargement statique**

Nous allons ici présenter les résultats des simulations réalisées avec un chargement statique en présence d'hydrogène, que nous confronterons aux données expérimentales détaillées dans le paragraphe 6.2.4. Il s'agit plus précisément ici de mettre en charge le modèle jusqu'à une valeur de  $K$  prédéfinie en environnement inerte, et de maintenir cette valeur de charge constante en présence d'une concentration d'hydrogène imposée en pointe de fissure. En fait, la présence d'hydrogène entraîne une diminution de l'énergie de rupture prévue par la TSL, comme montré dans le paragraphe 5.2. Théoriquement, la fissure peut donc avancer sous un chargement statique imposé, dès lors que l'hydrogène a réduit l'énergie de rupture jusqu'à une valeur critique pour cette charge, qui cause la rupture de l'élément.

La Figure 7 - 16 montre les vitesses de propagation calculées pour des valeurs de  $K$  de 17 à 50 MPa x m<sup>1/2</sup> pour un coefficient de diffusion  $D_L = 10^{-12}$  m<sup>2</sup>/s et une concentration d'hydrogène équivalente à une pression de 9 MPa. Les résultats sont comparés aux résultats expérimentaux sur la propagation de fissures cyclique et statique, présentés dans les paragraphes 6.2.4 et 6.4.

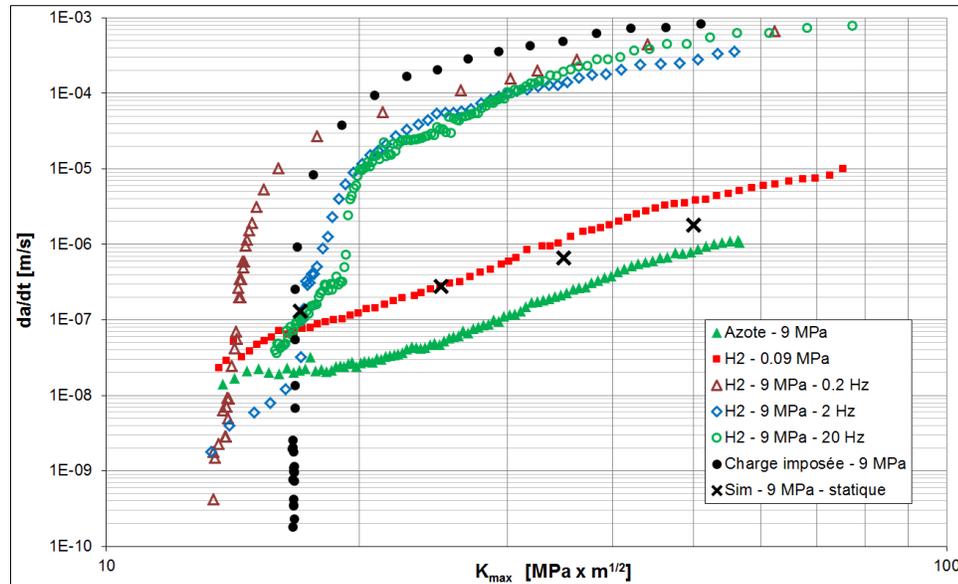


Figure 7 - 16 : Vitesses de propagation obtenues pour différentes valeurs de  $K$  imposées, pour un coefficient de diffusion  $D_L = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  et une pression de 9 MPa, comparées aux résultats expérimentaux

Les simulations montrent que le modèle peut représenter qualitativement l'avancement d'une fissure sous un chargement constant, à partir d'une valeur de charge d'environ  $K = 17 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Par contre, les vitesses de propagation sont plus faibles que les vitesses relevées expérimentalement de deux ordres de grandeur. En effet, la réduction de l'énergie de cohésion dépend directement de la quantité d'hydrogène qui diffuse en pointe de fissure (et plus précisément du taux de recouvrement  $\theta$ , selon la loi de Serebrinski). Cette concentration est montrée dans la Figure 7 - 17, pour une fissure qui n'avance pas (à cause d'un chargement très faible) et pour une fissure qui avance avec une vitesse constante. Ces simulations soulignent une fois de plus l'influence majeure de la diffusion d'hydrogène sur les vitesses de propagation. Le paragraphe 7.4 explorera la possibilité d'augmenter la composante de diffusion due à la contrainte hydrostatique, afin de simuler une zone enrichie en hydrogène plus étendue, et une accumulation de l'hydrogène près de la pointe de fissure (comme le montrera la Figure 7 - 23). Cette modification permettra d'étudier davantage la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure et son rôle sur la réduction de l'énergie de rupture des éléments cohésifs en pointe de fissure.

La valeur de  $K = 17 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  environ représente un seuil pour ce type de propagation, et ce pour n'importe quelle valeur du coefficient de diffusion et du temps de calcul. La Figure 7 - 17a montre la diffusion de l'hydrogène au cours d'une simulation de 100 000 secondes de chargement constant ( $K = 13 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ) avec une concentration correspondant à 9 MPa d'hydrogène imposée en fond de fissure. Dans ce cas, la fissure n'avance pas pendant le maintien du chargement, et l'hydrogène diffuse également dans toutes les directions. L'hydrogène a le temps pour diffuser sur plusieurs éléments cohésifs au-delà de la pointe de fissure, ce qui cause un taux de recouvrement  $\theta=1$ , et, par conséquent, une réduction maximale de l'énergie de rupture, sur plusieurs éléments. Comme on le voit sur la Figure 5.8, même pour  $\theta=1$  la courbe n'est pas rigoureusement plate, mais présente encore une allure exponentielle. Dans ce cas, le

chargement est alors trop faible pour causer la rupture, même pour un temps de simulation infini. Au-delà de cette valeur de chargement de seuil ( $K = 17 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ), la fissure peut avancer, avec une vitesse (très régulière) qui dépend de la concentration en hydrogène et de la valeur de  $K$  appliquée. La Figure 7 - 17b montre l'avancement de la fissure après 2900 secondes de calcul, sous un chargement constant de  $K = 25 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Malgré le temps limité pour la diffusion de l'hydrogène, qui influence seulement un élément au-delà de la pointe de la fissure, celle-ci avance dès la mise en charge, avec une vitesse constante de l'ordre de  $10^{-7} \text{ m/s}$  (rupture de l'élément cohésif en pointe de fissure chaque 10 secondes environ).

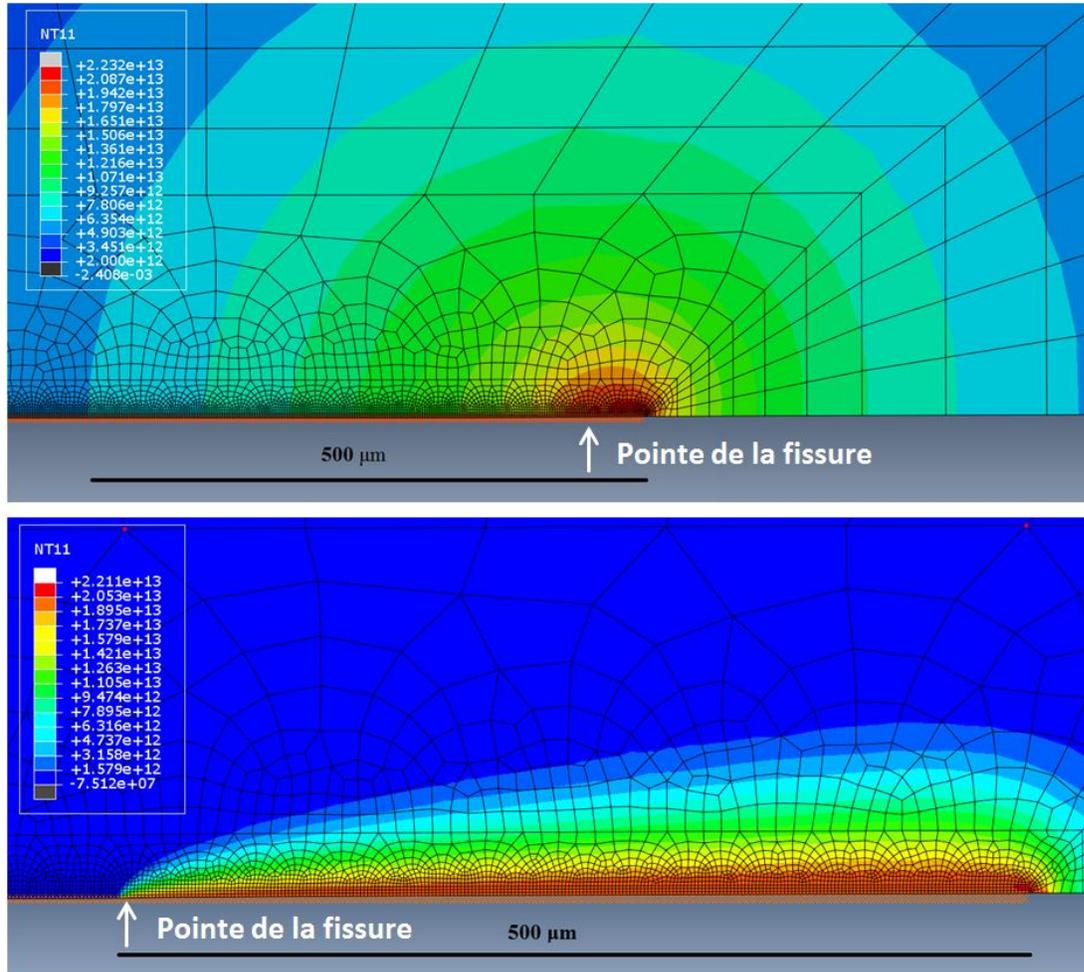


Figure 7 - 17 : Diffusion de l'hydrogène dans les simulations de propagation sous chargement statique, après 100 000 secondes et pour  $K = 13 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , où la fissure n'a pas avancé (a), et après 2 900 secondes et pour  $K = 25 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  (b), où la fissure a avancé sur environ 500  $\mu\text{m}$

L'application du modèle confirme rôle fondamental du couplage entre le chargement mécanique et l'hydrogène dans la propagation de fissure sous chargement statique. La campagne expérimentale (paragraphe 6.2.4) a montré que, au-dessus d'une valeur seuil du facteur d'intensité de contrainte  $K$ , la propagation de la fissure est immédiate, et cela jusqu'à rupture, en suivant une courbe ( $da/dt - K$ ) linéaire en représentation log-log. Par contre, au-dessous de la

valeur seuil, la fissure n'avance pas pendant un certain temps (dit d'incubation), et ensuite elle commence à propager, avec des vitesses qui finissent par rejoindre la courbe précédente (paragraphe 6.2.4). Ce temps d'incubation augmente avec la diminution de la valeur de  $K$ , jusqu'à arriver, probablement, à un temps infini au seuil de propagation. Le modèle nous a permis d'identifier de manière assez précise la valeur de  $K$  au-delà de laquelle la fissure propage sans incubation (environ 17-18 MPa x m<sup>1/2</sup>). Ceci est le signe d'une identification correcte des paramètres de la TSL, ainsi que de leur dépendance à la concentration d'hydrogène (avec la loi de Serebrinski) sous un chargement mécanique suffisamment élevé. Par contre, le modèle n'est pas capable de prédire correctement la propagation de la fissure après un certain temps d'incubation. Comme le montre la Figure 7 - 17a, pour un faible chargement statique, la fissure n'avance pas, même pour un temps de diffusion très long (aucun élément cassé après 100 000 secondes). En effet, si l'on considère l'endommagement de la TSL en présence d'hydrogène, on peut identifier une valeur de charge de traction maximale pour un taux de recouvrement  $\theta = 1$ . Cette dernière représente la valeur de charge minimale qu'il faut appliquer pour casser l'élément cohésif sous un chargement statique, de l'ordre du 10% de la valeur maximale en l'absence d'hydrogène. Physiquement, cette valeur représente le seuil de  $K$  pour la propagation, c'est-à-dire  $K_{I TH}$ . Au-dessous de cette valeur la fissure ne peut pas avancer sous un chargement statique. Cette conclusion ouvre la perspective d'une évolution du modèle tenant compte d'une réduction supplémentaire de l'énergie de rupture en présence d'une longue exposition à l'hydrogène. D'une façon alternative, on pourrait modifier la loi de diffusion (comme on le verra, par exemple, dans le paragraphe 7.4), afin de modéliser une accumulation de l'hydrogène près de la surface, qui puisse faire avancer la fissure après un certain temps d'incubation.

### **7.3 Influence de l'hydrogène sur la plasticité des éléments de bulk**

Dans le chapitre 6 nous avons montré l'influence de l'hydrogène sur les vitesses de propagation et sur la déformation hors plan. En particulier, nous avons identifié un régime fortement accéléré de la propagation (probablement dû à la superposition d'un effet statique). Parallèlement nous avons observé une activité plastique plus importante en présence d'hydrogène autour des lèvres de la fissure. La déformation hors plan est en outre beaucoup plus importante sur les lèvres de la fissure à partir de la transition des vitesses de propagation (haute pression d'hydrogène et faible fréquence de chargement). La taille de la zone plastifiée n'est quant à elle pas influencée par la présence de l'hydrogène. Le modèle présente des limites dans la simulation de l'augmentation brutale des vitesses de propagation, et il ne peut pas expliquer l'influence de l'hydrogène sur la déformation hors plan. Par ailleurs, le modèle de zone cohésive développé, de par son concept même, se base principalement sur une théorie de type HEDE. L'ajout de l'influence de l'hydrogène sur la plasticité des éléments de volume entourant les éléments cohésifs contribuerait à représenter les observations expérimentales sur la déformation hors plan. Cette modification traduit alors, avec des outils macroscopiques, les effets d'un mécanisme basé sur la plasticité de

type HELP (et/ou AIDE). De plus, d'un point de vue plus fondamental, cette modification nous aiderait à comprendre l'effet de l'hydrogène sur la modification des propriétés mécaniques du matériau en pointe de fissure, ou d'envisager des essais mécaniques permettant d'identifier ces modifications de la réponse du matériau.

### 7.3.1 Effet de l'hydrogène sur la limite d'élasticité du bulk

Des études récentes ont essayé de modéliser l'effet de l'hydrogène sur la modification du comportement mécanique des métaux [210–212]. Sasaki et al. [210] ont réalisé des analyses par éléments finis sur un modèle qui considère les effets de l'hydrogène sur la limite d'élasticité et les coefficients d'écrouissage du matériau. Ils ont utilisé des coefficients (coupling-effect parameters) qui décrivent la dépendance de la valeur de la limite d'élasticité et de l'écrouissage en fonction de la concentration en hydrogène. Ils ont montré que la diminution de ces derniers en présence de l'hydrogène a pour effet une augmentation de la taille de la zone plastifiée et une augmentation de la déformation plastique locale en pointe de fissure.

Dans ce même esprit, nous avons entrepris d'implémenter des modifications des paramètres de la loi d'écrouissage cinématique non-linéaire en fonction de la concentration en hydrogène dans la subroutine UMAT. En effet, cette subroutine, qui définit le comportement mécanique des éléments de bulk, possède l'information de la température des nœuds qui, grâce à l'analogie entre l'équation de la chaleur et l'équation de diffusion de la masse, correspond en réalité ici à la concentration en hydrogène, calculée dans la subroutine UMATHT. Cette information sera alors utilisée pour la modification des paramètres en fonction de la valeur locale de la concentration d'hydrogène.

Tout d'abord, nous avons essayé une modification de la limite d'élasticité  $\sigma_y$  en fonction de la concentration totale locale en hydrogène  $C$ . Il s'agit ici d'une diminution de  $\sigma_y$  qui dépend du rapport entre la concentration  $C$  et la valeur de concentration maximale imposée en fond de fissure  $C_{max}$ , calculée avec la loi de Sievert. En général, les modifications apportées sont du type présenté en Figure 7 - 18, caractérisé par une forte réduction de  $\sigma_y$ , linéaire en fonction de la concentration d'hydrogène locale  $C$ , jusqu'à une valeur de concentration égal à 10%, 1% ou 0.1 % de la concentration maximale  $C_{max}$  (1% sur la figure). Cette réduction peut mener à des valeurs de  $\sigma_y$  comprises entre 0.6 et 0.9 fois  $\sigma_{y\ max}$  (i.e., sans effet d'hydrogène). Ensuite, jusqu'à la valeur de concentration maximale, la limite d'élasticité peut rester constante ou se réduire davantage (sur la figure, on observe une réduction de 0.8 à 0.7 fois  $\sigma_y$ ).

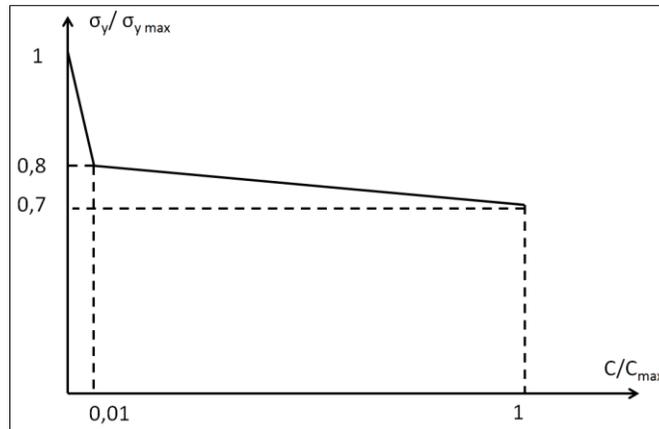


Figure 7 - 18 : Exemple de la modification de la limite d'élasticité  $\sigma_y$  en fonction de la concentration d'hydrogène locale  $C$

Plusieurs combinaisons pour la réduction de la limite d'élasticité ont été testées. Il faut toutefois préciser que plus la limite d'élasticité est réduite, plus les simulations ont du mal à converger, en raison de l'abaissement de la contrainte maximale admissible des éléments de bulk. En effet, la contrainte maximale des éléments de bulk pour l'écroutissage cinématique non linéaire est  $\sigma_{max} = \sigma_y + C\gamma = 1200$  MPa, ce qui est réduit à 1050 MPa en présence d'une réduction de 0.8 fois de la limite d'élasticité. Une valeur de contrainte très proche de ce maximum est atteinte près de la pointe de la fissure, ce qui peut causer des instabilités numériques des calculs pour une réduction plus marquée. Les résultats que nous allons présenter dans la suite ont été obtenus avec une réduction de  $\sigma_y$  d'un facteur 0.8 pour 1% de la concentration maximale, et une valeur de  $\sigma_y$  constante (égale à  $0.8 \sigma_{y,max}$ ) pour des concentrations supérieures à 1%.

### 7.3.2 Simulation de la déformation hors plan

Nous avons réalisé des simulations de propagation de fissures avec la modification proposée. Les calculs ont été réalisés pour une pression de 9 MPa, une valeur de  $\Delta K = 10$  MPa  $\times$  m<sup>1/2</sup>, et une fréquence de chargement cyclique de 0.2 Hz. L'effet de cette modification consiste en une diminution des vitesses de propagation de fissure (environ 5 fois plus faibles), due à la redistribution de la contrainte de traction sur plusieurs éléments cohésifs. Il se traduit par une réduction de la contrainte que le bulk peut exercer sur l'élément cohésif en pointe de fissure, avec, par conséquent, une augmentation moins rapide de la variable d'endommagement à cause du chargement cyclique. Malgré cette contradiction sur les vitesses de propagation, nous avons étudié l'effet de cette modification sur la déformation plastique en pointe de fissure, afin d'identifier des pistes d'amélioration du modèle, et des éléments qui puissent nous aider à comprendre la modification des mécanismes de rupture en présence d'hydrogène.

La Figure 7 - 19 montre la déformation plastique autour de la fissure, avec une simulation sans effet de l'hydrogène sur la plasticité sur la gauche, et l'effet de cette modification sur la droite. Les bandes de la même couleur représentent les mêmes valeurs de déformation plastique. On peut

observer que, avec cette modification, la taille de la zone plastique ne change pas. Par contre la déformation plastique est plus importante près des lèvres de la fissure d'un facteur environ 1.4.

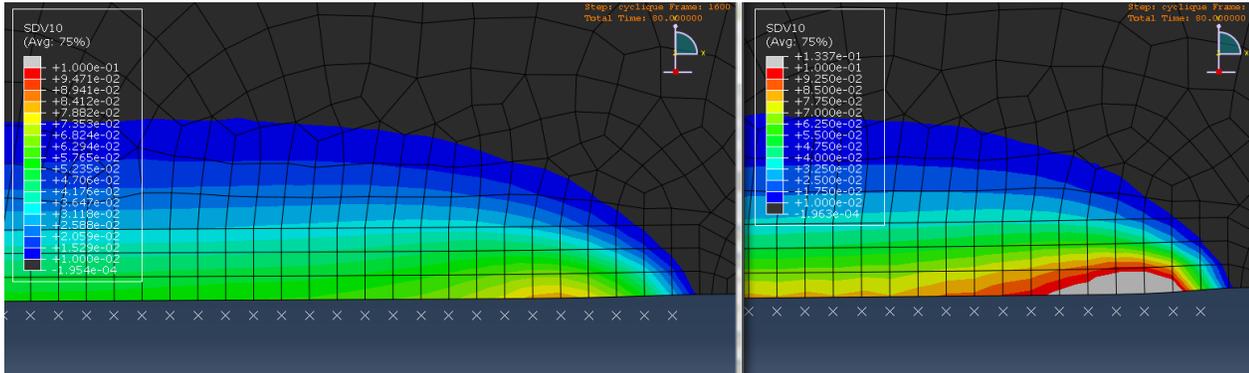


Figure 7 - 19 : Déformation plastique autour de la fissure : simulation sans effet de l'hydrogène sur la plasticité sur la gauche, et simulation avec l'effet de cette modification sur la droite

La déformation plastique hors plan autour de la fissure est calculée à partir du cumul des incréments de déformation plastique dans les directions « x » et « y » au cours du chargement :

$$\varepsilon_{33}^n = \varepsilon_{33}^{n-1} - (\Delta\varepsilon_{11}^n + \Delta\varepsilon_{22}^n) \quad (7.3)$$

La Figure 7 - 20a montre la déformation hors plan calculée sans effet de l'hydrogène sur la plasticité, tandis que la Figure 7 - 20b montre l'effet de cette modification. La flèche blanche sur les deux figures indique la position actuelle de la pointe de la fissure.

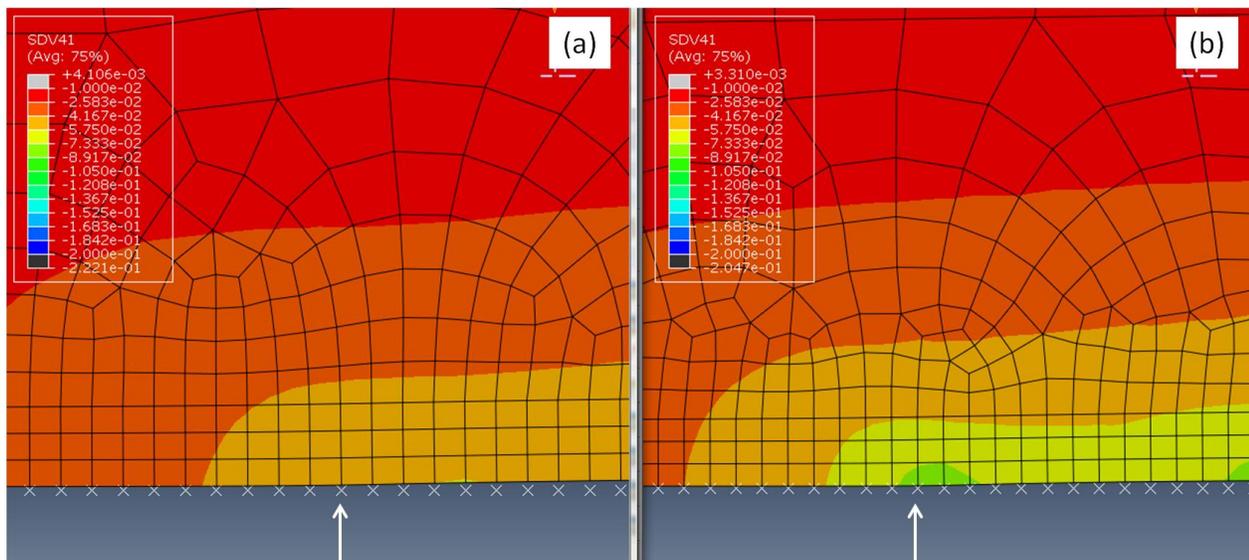


Figure 7 - 20 : Déformation hors plan autour de la fissure sans effet de l'hydrogène sur la plasticité (a), et avec l'effet de cette modification (b) pour une pression de 9 MPa, une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , et une fréquence de chargement cyclique de 0.2 Hz

Les simulations montrent qu'avec cette modification le modèle peut prédire une activité plastique hors plan plus importante en présence d'hydrogène. De plus, la taille de la zone plastifiée reste

inchangée, à cause de la diffusion de l'hydrogène, limitée à une zone proche de la lèvres de la fissure. Nous avons comparé les résultats des simulations aux résultats expérimentaux présentés dans le paragraphe 6.3 (et plus précisément dans la Figure 6.18).

La Figure 7 - 21 montre cette comparaison pour l'essai en environnement inerte et sous 9 MPa d'hydrogène, pour une valeur de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ . Les résultats expérimentaux sont représentés par des lignes continues, et les résultats numériques par des lignes pointillées. La figure reprend la représentation des mesures de « déplacement hors plan » décrite dans le paragraphe 6.3. Les valeurs de retrait sur les courbes expérimentale et numérique sont normalisées par rapport à la valeur maximale de retrait en environnement inerte, afin de montrer les différences de déplacement hors plan en présence d'hydrogène mesuré et calculé.

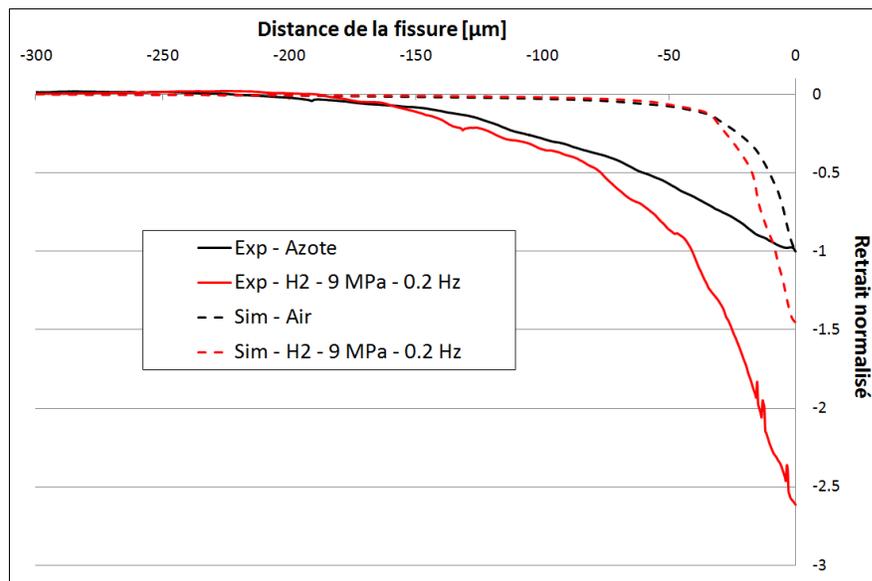


Figure 7 - 21 : Comparaison du retrait du matériau autour de la fissure dans les cas expérimental et numérique, normalisés par rapport à la valeur maximale de retrait en environnement inerte

Les courbes expérimentales montrent une augmentation de la déformation hors plan d'un facteur 2.5 sur la lèvres de la fissure, sans variation de la taille de la zone plastique. En ce qui concerne la simulation numérique, la présence de l'hydrogène entraîne une augmentation de la déformation hors plan près de la lèvres de la fissure d'un facteur 1.5. De plus, on observe une variation de la plasticité dans les premiers 30 µm près de la fissure, ce qui signifie que ce type de modification du modèle représente bien l'effet de localisation de la plasticité supposé par la théorie HELP, et reprend qualitativement les observations expérimentales sur la déformation hors plan.

Deux pistes d'amélioration pourraient être envisagées :

- une influence plus importante de l'hydrogène sur la plasticité. Cette solution n'a pas pu être menée à terme à cause notamment de problèmes de convergence. En effet, comme évoqué précédemment, la réduction de la contrainte maximale supportée par les éléments de bulk peut freiner la convergence.

- une modélisation tridimensionnelle. Le modèle actuel est bidimensionnel et utilise des éléments en contraintes planes. Les valeurs de déformation hors plan ne sont donc pas bien représentées. Une version 3D est en cours de développement, afin de mieux approximer la déformation du matériau dans la direction de l'épaisseur de l'éprouvette.

## 7.4 Effet de la contrainte hydrostatique sur la diffusion

Yokobori et al. [213–215] ont étudié l'effet de l'ajout d'un « facteur multiplicatif »  $\alpha$  sur un modèle de diffusion de l'hydrogène autour de la pointe d'une fissure. Ils affirment que les lois classiques de diffusion (loi de Krom, utilisée dans notre modèle) sont valables dans un système mécanique conservatif, par exemple dans un champ de contraintes élastiques. Cependant, la plasticité est source d'irréversibilité, et la condition de système conservatif n'est plus respectée par les lois de diffusion. D'après ces auteurs, en absence de ces corrections, la concentration d'hydrogène en pointe de fissure est sous-estimée. Des coefficients multiplicatifs  $\alpha_i$  pour les facteurs de la loi de diffusion doivent être pris en compte. Cette méthode, nommée par les auteurs «  $\alpha$  multiplication method » [214], permet de prédire la diffusion réelle de l'hydrogène autour de la pointe d'une fissure, et donc de mieux représenter le phénomène de la FPH.

La loi de diffusion que nous allons utiliser a la forme suivante :

$$J = -\alpha_1 D_L \nabla C_L + \alpha_2 \frac{D_L C_L \bar{V}_H}{RT} \nabla \sigma_h \quad (7.4)$$

Le flux d'hydrogène dû au premier terme de l'équation 7.4, qui représente la loi de Fick, est généralement plus grand que celui du terme lié à la contrainte hydrostatique. Dans ces conditions, l'hydrogène ne se concentre pas localement dans la région de contrainte hydrostatique maximale. Dans notre première modification, le premier terme reste inchangé (valeur du coefficient  $\alpha_1$  unitaire). En utilisant une valeur plus élevée pour  $\alpha_2$ , nous pouvons étudier l'évolution de la concentration d'hydrogène autour de la fissure, et son impact sur les vitesses de propagation.

Afin d'étudier l'influence de ce paramètre sur nos simulations, nous avons réalisé des calculs avec les coefficients multiplicatifs suivants :

- $\alpha_1 = 1$ , qui multiplie le terme de diffusion fickien ;
- $\alpha_2 = 10$ , qui multiplie le terme de diffusion dû à la contrainte hydrostatique.

Les calculs ont été réalisés avec une concentration d'hydrogène en pointe de fissure qui correspond à 9 MPa, pour un chargement de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ , à une fréquence de chargement de 20 Hz. La Figure 7 - 22 montre la diffusion de l'hydrogène et l'avancement de la fissure après 1000 secondes de calcul (20 000 cycles de fatigue). En haut on observe la diffusion calculée avec la loi de Krom, en bas la modification apportée par l'utilisation du coefficient multiplicatif  $\alpha_2 = 10$ .

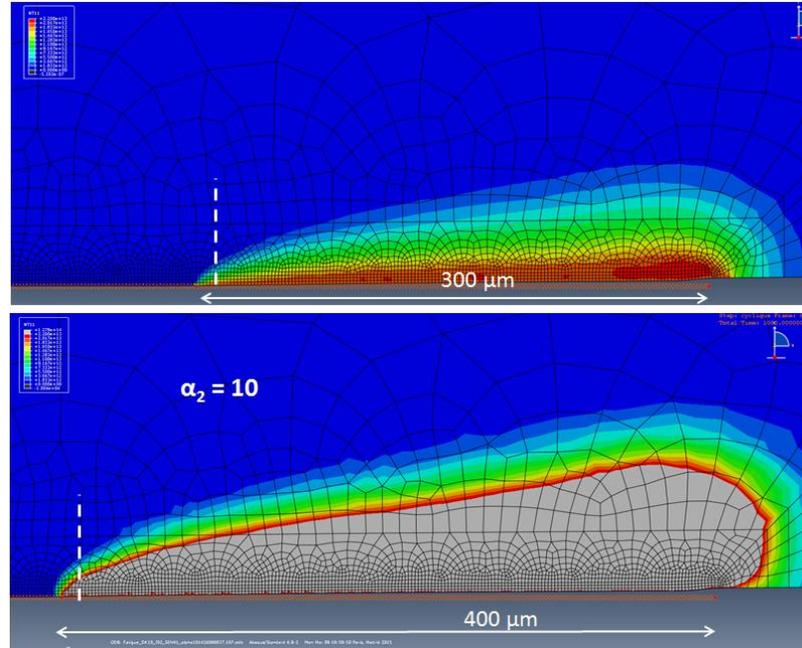


Figure 7 - 22 : Diffusion de l'hydrogène après 1000 secondes de calcul (20000 cycles de fatigue). Diffusion calculée avec la loi de Krom (haut), et modification apporté par l'utilisation du coefficient multiplicatif  $\alpha_2 = 10$  (bas), pour un chargement de  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$

Les limites des niveaux de couleur étant égales pour les deux images (la ligne rouge correspond à la concentration imposée et le dernier niveau de bleu correspond à un dixième de cette concentration ; le gris représente une concentration supérieure à celle imposée), il est clair que l'utilisation ce coefficient multiplicatif ( $\alpha_2 = 10$ ) permet de prendre en compte une accumulation importante de l'hydrogène autour de la fissure (partie grise de la figure). L'avancement de la fissure après les 1000 secondes de calcul (20000 cycles) passe de 300 à 400  $\mu\text{m}$ , c'est-à-dire une légère augmentation de la vitesse  $da/dN$  (facteur 1.33).

La Figure 7 - 23 montre l'évolution de la concentration d'hydrogène à partir de la pointe de la fissure, dans la direction « y », perpendiculaire à la direction de propagation, indiquée par la ligne blanche pointillée sur la Figure 7 - 22.

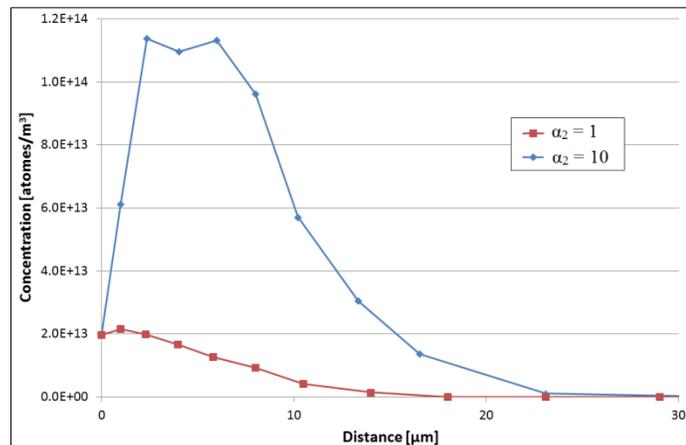


Figure 7 - 23 : Evolution de la concentration d'hydrogène à partir de la pointe de la fissure, dans la direction « y »

Le graphique nous montre l'influence considérable que le terme de diffusion dû à la contrainte hydrostatique peut dès lors avoir sur la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure. Cependant, il est très difficile de mesurer expérimentalement la concentration réelle en pointe de fissure. Il est donc impossible de déterminer des valeurs précises des paramètres multiplicatifs  $\alpha_i$ . Une piste pourrait être l'utilisation de la méthode d'autoradiographie du tritium, utilisée par Brass *et al.* [216] (méthode qui nécessite un système de mesure à haute résolution et de très basses températures), ou des analyses SIMS (spectrométrie de masse à ionisation secondaire) des concentrations locales de deutérium. Une alternative à ces techniques expérimentales lourdes pourrait être un recalage des coefficients  $\alpha_i$  pour représenter au mieux les résultats expérimentaux sur le déplacement hors plan autour de la fissure, et sur les vitesses de propagation de fissures de fatigue mesurées. De plus, les valeurs des coefficients multiplicatifs  $\alpha_i$  pourront être étudiées afin d'améliorer la réponse du modèle à la propagation d'une fissure sous chargement statique, comme montré dans le paragraphe 7.2.3.

## Bilan

Les améliorations apportées au modèle ont permis d'obtenir des résultats pour de nombreuses conditions différentes. Cependant, on remarque un intervalle de convergence des calculs, en termes de valeurs de  $\Delta K$ , intervalle qui devient plus étroit lorsque la concentration d'hydrogène ou le coefficient de diffusion augmentent, et lorsque la fréquence diminue. En général, plus l'effet de l'hydrogène sur la TSL est fort, plus les calculs ont du mal à converger.

Le modèle de zone cohésive développé permet de prédire une augmentation des vitesses de propagation sous hydrogène qui dépend de la concentration d'hydrogène en pointe de fissure, de la fréquence de chargement cyclique et du niveau de  $\Delta K$ . Ces conclusions suggèrent que le modèle représente bien le mécanisme HEDE, c'est-à-dire la réduction de l'énergie de cohésion en présence d'hydrogène.

La concentration d'hydrogène dans les éléments cohésifs en pointe de fissure augmente avec la pression et, surtout, avec la réduction de la fréquence de chargement. Dans ce cas, la réduction de l'énergie de rupture à cause de la présence de l'hydrogène est plus importante par rapport aux simulations à haute fréquence, où l'endommagement par cyclage est prédominant. Alors que les simulations à haute fréquence peuvent montrer une augmentation des vitesses d'un rapport 2 (à faible pression et haut  $\Delta K$ ) à un rapport 5-10 (à faible  $\Delta K$  et/ou pour un coefficient de diffusion plus élevé), la réduction de la fréquence d'un facteur 100 a montré une augmentation des vitesses d'un rapport 20 à 100, en fonction du  $\Delta K$  et de la pression d'hydrogène (Figure 7 - 14).

L'introduction d'un effet de l'hydrogène sur le comportement plastique des éléments de bulk induit une localisation de la plasticité autour de la fissure. Cependant, en l'état actuel, les vitesses de propagation prédites sont plus lentes à cause de l'adoucissement des éléments de bulk, qui se traduit par une répartition de la contrainte sur plusieurs éléments cohésifs en pointe de fissure et limite de ce fait l'endommagement de l'élément situé en pointe. Dans le futur, on pourrait

améliorer la réponse du modèle afin de mieux représenter les résultats expérimentaux, et utiliser l'information sur la réduction des propriétés mécaniques afin de réduire l'énergie de cohésion de l'élément cohésif, ou de provoquer une rupture précoce (par exemple en réduisant la valeur critique de  $D_m$  et  $D_c$  à l'augmenter de la déformation plastique cumulée). Ceci pourra nous permettre de représenter la transition des vitesses à partir d'une certaine valeur de  $\Delta K$ , combinée avec une certaine concentration d'hydrogène, de sorte à provoquer une augmentation significative de la déformation hors plan.

La diffusion de l'hydrogène dans le matériau dépend du gradient de concentration d'hydrogène et du gradient de contrainte hydrostatique (loi de Krom). La contribution des deux composantes a été étudiée. Nous avons observé que l'utilisation de coefficients multiplicatifs  $\alpha_i$  peut modifier fortement la concentration de l'hydrogène autour de la fissure, et permet de représenter une accumulation près des lèvres de fissure. De plus, la plus grande pénétration de l'hydrogène permet une augmentation des vitesses de propagation. Cette modification, combinée à l'influence de l'hydrogène sur la plasticité, pourra permettre de représenter au mieux les résultats expérimentaux sur la déformation hors plan. Des essais spécifiques pour comprendre le rôle de l'hydrogène sur la modification de la réponse du matériau pourront être envisagés. Par exemple, Barnoush et Vehoff [217] ont réalisé des essais de nano-indentation électrochimique in situ, sans hydrogène et avec chargement en hydrogène. Ils ont montré une énergie de formation des défauts réduite par l'hydrogène, et une réduction de l'énergie de liaison interatomique et de l'énergie de faute d'empilement. Des essais similaires pourront être envisagés, afin d'identifier localement le comportement du matériau en présence d'hydrogène, et insérer ces informations dans le modèle.

Pour résumer, la base de départ est un modèle de zone cohésive influencé par l'hydrogène, qui représente le mécanisme HEDE. Les modifications principales que nous avons introduites dans le modèle permettent de prendre en compte et de coupler les différents mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène. La localisation de la plasticité autour de la fissure, que nous avons observée expérimentalement, suggère la présence d'un mécanisme de modification du comportement local de type HELP et/ou AIDE. Nous avons par conséquent étudié l'influence de la concentration d'hydrogène sur la limite d'élasticité des éléments de bulk, dans le but de représenter numériquement, avec des outils macroscopiques et globaux, les conséquences d'un adoucissement local. Cette modification permet de représenter qualitativement la localisation de la plasticité autour de la fissure, sans influence sur la taille de la zone plastique. Le modèle nous permet alors d'affirmer que la présence d'hydrogène en pointe de fissure a un effet sur la réponse mécanique du matériau, mais nous ne pouvons pas quantifier cet effet. Dans le futur nous pourrions étudier l'effet d'une modification des paramètres d'écrouissage  $C$  et  $\gamma$  en présence d'hydrogène, afin de nous rapprocher des observations expérimentales sur la déformation hors plan. Cette modification nous aidera à mieux comprendre la modification du comportement mécanique du matériau en présence d'hydrogène. A l'inverse, on pourrait essayer de caractériser expérimentalement le comportement local du matériau en présence d'hydrogène, puis introduire ces informations dans le modèle. Ensuite, nous avons étudié la sensibilité de la réponse du

modèle à la composante de diffusion de l'hydrogène due à la contrainte hydrostatique. Cette modification permet de représenter une accumulation de l'hydrogène autour de la pointe de fissure, et une plus profonde pénétration de l'hydrogène dans le volume. De plus, comme discuté dans le paragraphe 7.1.3, on pourrait imaginer un gradient du coefficient de diffusion près de la pointe de la fissure, à cause d'un état complexe de déformation plastique et de contrainte qui fait augmenter à la fois la solubilité de l'hydrogène (à cause du piégeage) et la diffusivité (à cause du gradient de contrainte hydrostatique). L'augmentation de la contribution de diffusion due à la contrainte hydrostatique permet de représenter ces phénomènes physiques, et en particulier l'augmentation de la diffusivité par l'hydrogène piégé irréversiblement. Le modèle, à travers l'équation 1.8 proposée par Kumnick et Johnson [46], prend en compte l'augmentation de pièges avec la déformation plastique. De plus, à travers la théorie d'Oriani, le modèle considère un équilibre entre la diffusion interstitielle et le piégeage de l'hydrogène. En pointe de fissure, par contre, les forts gradients de contrainte et de déformation font que la théorie d'Oriani et/ou l'équation de Kumnick-Johnson ne sont plus valides, ou pas assez précises. Des travaux de la littérature montrent la possibilité d'identifier des lois similaires en utilisant des résultats expérimentaux en déformation cyclique [51]. Pour le fer pur (paragraphe 4.3) nous avons montré une forte augmentation de l'hydrogène piégé irréversiblement avec la déformation plastique. Dans le futur, des études expérimentales, sur l'exemple de celle présentée dans le chapitre 4 sur le fer pur, pourront permettre de mieux identifier ces coefficients multiplicatifs  $\alpha_i$ , afin de représenter non seulement qualitativement, mais peut-être aussi quantitativement, les effets réels de l'hydrogène en pointe de fissure.

Enfin, l'optimisation des coefficients multiplicatifs, combinée avec l'étude de l'influence de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques du matériau, permettra de comprendre l'importance des différents mécanismes dans la fissuration assistée par l'hydrogène, et leur interaction (couplage mécanique-diffusion).

# Discussion et conclusion

Cette partie dresse un bilan général des travaux réalisés afin d'en tirer les conclusions générales. Nous commencerons par rappeler les objectifs. Ensuite nous mènerons une analyse comparative du comportement en fissuration sous hydrogène gazeux du fer Armco et de l'acier 15-5PH afin de tirer des conclusions globales. Cette partie sera suivie d'un bilan des travaux menés sur l'amélioration du modèle numérique. Enfin, nous allons énoncer les perspectives futures en termes de caractérisation, de compréhension et de modélisation de ces phénomènes.

## 1 Objectifs

Des études précédemment menées au laboratoire ont mis en évidence une dégradation importante de la résistance à la fissuration de l'acier inoxydable martensitique 15-5PH en présence d'hydrogène gazeux sous haute pression. L'examen des surfaces de rupture a en outre montré un effet marqué de la pression d'hydrogène et de la valeur de  $\Delta K$  sur les modes de rupture. Bien que la fissuration assistée par l'hydrogène soit un phénomène complexe, et de ce fait pas entièrement compris à ce jour, la littérature nous fournit des éléments conceptuels pour l'interprétation des observations expérimentales, qui s'adaptent plus ou moins bien aux différents cas. Ainsi, les théories HEDE, HELP et AIDE, en particulier (paragraphe 1.6), décrivent des mécanismes potentiels pour rendre compte de la modification locale du comportement et de la perte de résistance à la propagation de fissure en présence d'hydrogène, en lien avec les éventuelles modifications du mode de rupture observées sur les surfaces de rupture.

Le présent travail de recherche comportait initialement plusieurs objectifs. Tout d'abord, l'étude expérimentale vise à compléter les travaux antérieurs sur la propagation de fissures dans l'acier inoxydable martensitique 15-5PH en présence d'hydrogène gazeux. Il s'agit d'un acier à haute résistance, de ce fait très sensible à la fissuration assistée par l'hydrogène [197] mais qui, du fait de sa microstructure complexe, ne permet pas une analyse aisée des mécanismes de rupture. L'étude s'est portée alors sur le fer Armco, afin de disposer d'une microstructure simple tout en conservant une bonne affinité avec l'hydrogène. L'objectif a dès lors porté sur l'analyse du rôle de l'état de déformation sur la solubilité apparente de l'hydrogène, et la mesure des énergies de piégeage, afin d'obtenir une meilleure identification des processus de diffusion intervenant en pointe de fissure, et donc des éléments d'interprétation quantitatifs dans l'étude des changements de mécanismes en pointe de fissure conduisant à la rupture.

Parallèlement, un modèle numérique permettant d'analyser la compétition entre les cinétiques de propagation des fissures sous chargement cyclique et de diffusion de l'hydrogène en fond de fissure a été développé. Il s'agit ici de la poursuite des travaux de Clara Moriconi [12] sur un modèle de zone cohésive 2D influencé par l'hydrogène, qui, par sa nature même, représente en première analyse un mécanisme de type HEDE. Ce modèle n'étant pas capable, dans sa version originelle, de prédire quantitativement l'augmentation des vitesses de propagation observée

expérimentalement sous forte pression d'hydrogène et faible fréquence de chargement, il s'est avéré nécessaire de l'étoffer afin de modéliser les différents phénomènes observés, non seulement en termes de réduction d'énergie de cohésion, mais également de modification du comportement local et de transport de l'hydrogène en pointe de fissure.

## 2 Discussion et conclusion de l'étude expérimentale

Les études expérimentales sur la propagation de fissures de fatigue sous hydrogène gazeux dans le fer pur et dans l'acier martensitique 15-5PH ont été présentées séparément dans le manuscrit. Pour l'acier 15-5PH, la nécessité principale était l'achèvement de la campagne expérimentale, pour le développement du modèle numérique. Le fer pur a été choisi pour sa microstructure simple, afin d'analyser les mécanismes de fragilisation par l'hydrogène. Nous allons ici discuter les similitudes et les différences dans la fissuration assistée par l'hydrogène dans les deux matériaux, afin d'en tirer des conclusions globales.

Le fer pur et l'acier martensitique 15-5PH sont deux matériaux très différents en termes de sensibilité à l'hydrogène, notamment en raison de la différence de microstructure. Pour le fer pur, à la température ambiante, nous avons mesuré un coefficient de diffusion  $D_L = 2.5 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  pour l'état non-déformé (paragraphe 4.4). Pour les aciers martensitiques, la littérature donne des valeurs de l'ordre de  $D_L = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  [22,43]. Par contre, la solubilité de l'hydrogène est très faible dans le fer pur par rapport aux aciers [22]. Ces considérations permettent une première confrontation sur le rôle de la diffusion de l'hydrogène dans les processus d'endommagement de ces deux matériaux. En fait, nous avons observé une saturation de l'effet de l'hydrogène sur les vitesses de propagation de fissures dans le fer pur lorsque l'on rend plus sévères les conditions d'exposition. Cet effet de saturation peut être dû à un enrichissement rapide de la zone en avant de la pointe de fissure jusqu'à saturation, ce qui rend les vitesses de propagation insensibles à la réduction de la fréquence de chargement cyclique au-dessous d'une certaine valeur (dans notre cas, comme montré en Figure 3 – 19, cela correspond à une fréquence de 2 Hz sous 35 MPa d'hydrogène gazeux). Dans le cas de l'acier 15-5PH, les vitesses de propagation dépendent de la pression et de la fréquence de chargement dans tout l'intervalle exploré. En effet, compte tenu du coefficient de diffusion plus faible et de la solubilité plus élevée, une augmentation de l'exposition (augmentation de la pression et/ou réduction de la fréquence de chargement), se traduit par une augmentation des vitesses de propagation, sans qu'aucun effet de saturation ne soit observé. Plus exactement, nous avons observé un début de saturation des vitesses de propagation consécutif à l'augmentation de la pression pour une fréquence de 20 Hz (Figure 6 - 5), avec la pente des courbes qui diminue à partir de  $da/dN = 10^{-5} \text{ m/cycle}$ . Ces observations suggèrent qu'à fréquence élevée, à cause de l'avancement rapide de la fissure, on ne peut pas dépasser une certaine valeur de concentration en pointe de fissure. Par contre, une durée d'exposition plus longue permet une diffusion plus importante dans le volume à chaque cycle, qui compense la valeur plus faible du coefficient de diffusion. Dans ce cas, le paramètre temps joue un rôle plus important que la pression sur l'augmentation des vitesses de propagation.

La Figure 8 - 1 montre la superposition des courbes de propagation obtenues pour le fer pur et l'acier martensitique 15-5PH sous différentes pressions d'hydrogène gazeux et pour différentes fréquences de chargement. Les essais ont été réalisés à un rapport de charge  $R = 0.7$  pour le 15-5PH et  $R = 0.1$  pour le fer pur, en utilisant, sur les courbes de propagation de ce dernier, le facteur d'intensité des contraintes effectif  $\Delta K_{eff}$ , corrigé des effets de fermeture (a priori il n'y a pas de fermeture pour le 15-5PH à  $R = 0.7$ ). Bien que les courbes en environnement inerte soient proches les unes des autres, on observe un écart important sur les vitesses de propagation en présence d'hydrogène, l'acier 15-5PH présentant la plus grande sensibilité.

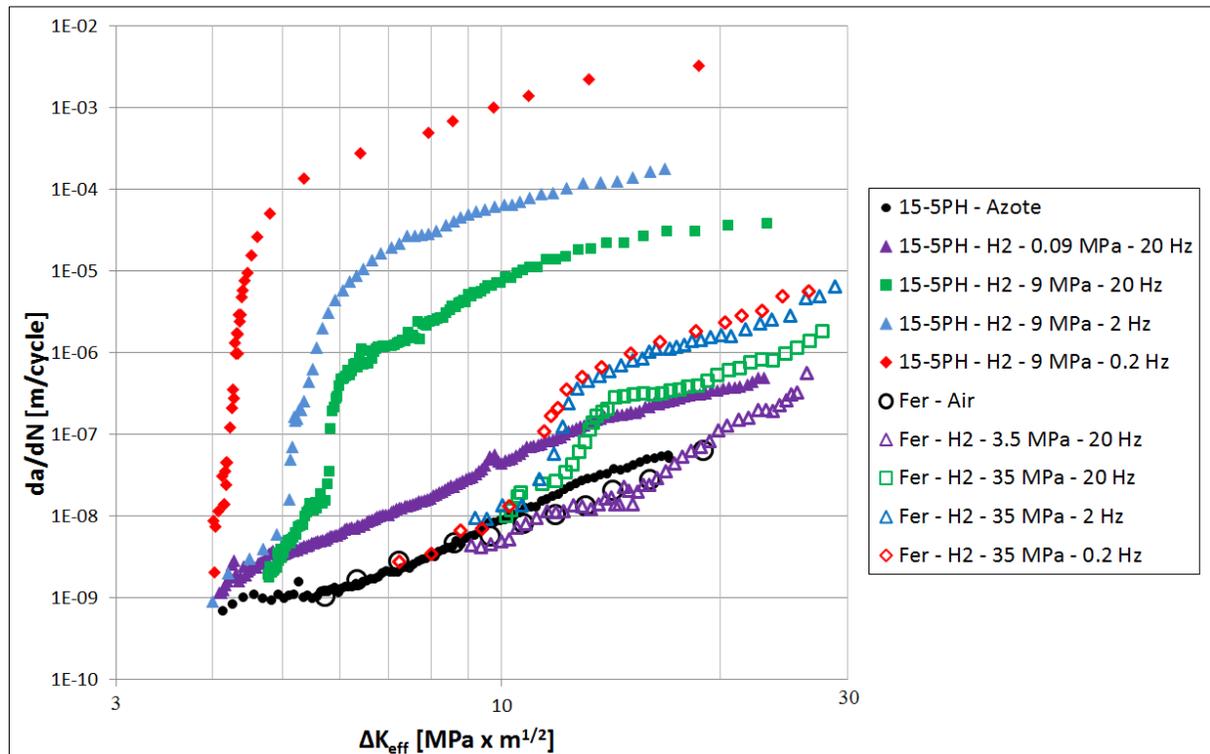


Figure 8 - 1 : Courbes de propagation obtenues pour le 15-5PH (symboles pleines) et pour le fer pur (symboles ouverts) sous différentes pressions d'hydrogène gazeux et pour différentes fréquences de chargement cyclique

En particulier, on peut observer que l'effet de l'hydrogène sur la propagation de fissures dans le fer pur (symboles ouverts sur la figure) est limité par rapport à l'effet sur le 15-5PH (symboles pleines). Pour ce dernier matériau, on observe une forte augmentation des vitesses de propagation lorsque la pression augmente et la fréquence de chargement diminue. Dans ce cas, l'exposition à l'hydrogène est un paramètre clé, du fait de la solubilité élevée d'une part, et de fortes contraintes hydrostatiques susceptibles de se développer en pointe de fissure d'autre part (qui compensent, en part, le coefficient de diffusion plus faible), comme observé dans le paragraphe 6.2.5. De plus, il a été montré (paragraphe 6.2.4) que, pour ce matériau, la présence de l'hydrogène en pointe de fissure peut causer la propagation de la fissure sous un chargement statique. Le fer pur, par contre, présente une solubilité plus faible, et des contraintes moins élevées en pointe de fissure. Ceci explique sans doute en grande partie l'effet limité de l'hydrogène sur les vitesses de

propagation en fatigue, la saturation des vitesses de propagation observée à forte pression d'hydrogène, ainsi que l'absence de propagation sous chargement statique à forte pression (conditions testées : 35 MPa d'hydrogène et  $K = 14, 18$  et  $22 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ).

Nous avons par ailleurs analysé les surfaces de rupture en présence d'hydrogène dans les paragraphes 3.3 (fer pur) et 6.2 (15-5PH). Bien que les microstructures soient très différentes, la fissuration sous hydrogène présente des effets similaires sur la modification des modes de rupture. En effet, sous environnement inerte ou légèrement agressif (air ou azote) la rupture se fait très majoritairement par un mode de rupture transgranulaire de type quasi-clivage, avec un motif de marquage des surfaces suivant la direction de propagation de la fissure (Figure 8 - 2a et b pour  $\Delta K = 10 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$ ). Sous une pression d'hydrogène suffisamment élevée, on observe un passage vers une propagation principalement intergranulaire à faible  $\Delta K$ , même si les vitesses de propagation demeurent similaires voire légèrement plus élevées qu'à l'air (Figure 8 - 2c et d). Dans le régime suivant, autour de la transition de vitesses de propagation, la rupture redevient soudainement transgranulaire (Figure 8 - 2e et f). Pour le fer pur, cette transition se produit toutefois juste avant l'augmentation des vitesses de propagation, ce qui correspond à une valeur de  $\Delta K$  d'environ  $11 \text{ MPa} \times \text{m}^{1/2}$  sous une pression de 35 MPa. Pour l'acier 15-5PH, la propagation est principalement intergranulaire avant et pendant la transition des vitesses, suivie du régime accéléré dans lequel la propagation est complètement transgranulaire. Dans ce cas, la transition des vitesses de propagation se produit à des valeurs de  $\Delta K$  différentes en fonction de la pression et de la fréquence, et la modification des modes de rupture suit la transition des vitesses, et non une valeur précise de  $\Delta K$ .

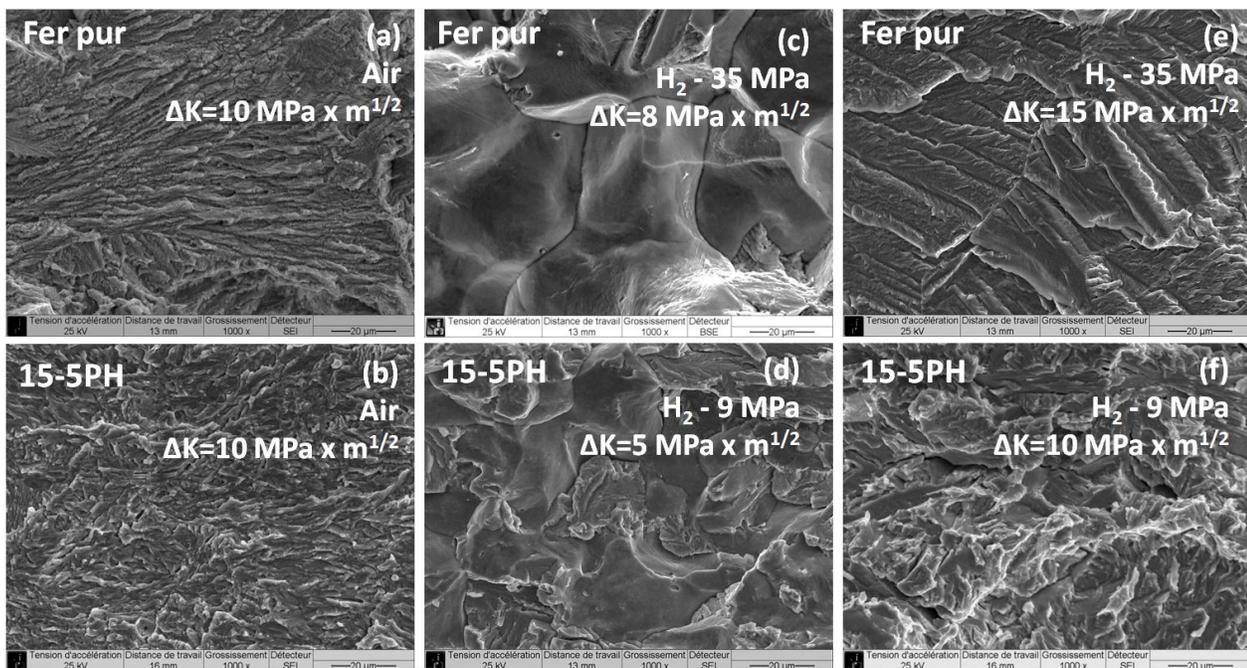


Figure 8 - 2 : Surfaces de rupture dans le fer pur et l'acier 15-5PH : sous environnement inerte ou légèrement agressif (a et b), sous hydrogène pour de faibles valeurs de  $\Delta K$  (c et d) et pour des valeurs de  $\Delta K$  élevées (e et f)

La confrontation des surfaces de rupture montre que l'analyse des mécanismes de rupture sous hydrogène est plus aisée sur un matériau avec microstructure simple (dans ce cas le fer pur). En effet, malgré l'impact modéré de l'hydrogène sur les vitesses de propagation dans ce matériau, on peut facilement (et plus clairement) identifier les différences des modes de rupture. Afin d'améliorer la compréhension des phénomènes observés et la prise en compte dans le modèle, nous avons réalisé des mesures et des observations MET de structures déformées cycliquement, présentées dans le chapitre 4. Nous avons ainsi mesuré l'augmentation de la densité de dislocations en fonction de la déformation plastique cumulée. Le dosage de l'hydrogène a permis d'identifier quantitativement une augmentation de la solubilité, et en particulier de l'hydrogène piégé de façon irréversible, lorsque le matériau est sujet à différents états de déformation plastique. En pointe de fissure, le chargement cyclique entraîne une déformation plastique cumulée importante associée à la formation d'une structure de dislocations qui peuvent agir comme sites de piégeage pour l'hydrogène.

A faible valeur de  $\Delta K$ , la fissure avance lentement, dans une zone déjà enrichie en hydrogène, et la propagation est complètement intergranulaire (Figure 8 - 2c). En se basant sur les travaux de Murakami et al. [134] (discutés dans le paragraphe 3.3), nous pouvons supposer que la propagation est rendue plus difficile à l'intérieur des grains à cause d'une « surconcentration » en hydrogène. La propagation progresse alors le long des joints de grain, sans modification des vitesses de propagation. Au-delà d'un certain niveau de  $\Delta K$ , la fissure avance par clivage à l'intérieur des grains, et l'avancée à chaque cycle devient très importante, parce qu'il n'y a plus les conditions pour la surconcentration en hydrogène (Figure 8 - 2e). Ce type de propagation se réalise par formation de stries qui se corrént bien aux vitesses de propagation (voir Figure 3 - 24). Le scénario suivant peut être proposé pour décrire ce régime. Au début d'un cycle de chargement, la fissure commence à avancer très rapidement dans une petite zone fortement enrichie par l'hydrogène, par clivage. Ensuite, la propagation poursuit sa progression au sein d'une zone qui n'est pas enrichie en hydrogène, et après un certain avancement, elle s'arrête. Des mesures plus précises du coefficient de diffusion dans le matériau déformé cycliquement pourront permettre de mieux décrire le transport de l'hydrogène en fonction du gradient de déformation. Dans le futur, ces résultats pourront être introduits dans le modèle numérique afin de représenter au mieux les observations expérimentales.

Concernant l'acier 15-5PH, nous ne disposons pas de toutes ces informations sur la diffusion en fonction de la déformation. Toutefois, on observe que la pression d'hydrogène génère de la même façon des facettes intergranulaires à faible  $\Delta K$ , ce qui signifie que, dans ces conditions, les joints de grain représentent le parcours préférentiel pour l'avancement de la fissure. Cependant, dans ce cas, contrairement au fer pur, les vitesses sont plus élevées que celles mesurées à l'air, d'un facteur 5. En effet, pour le 15-5PH il n'y a pas d'effet de sursaturation en hydrogène en pointe de fissure, à cause notamment du coefficient de diffusion plus faible et de la solubilité plus élevée. Les joints de grain constituent la direction de propagation préférentielle, du fait d'une énergie de cohésion réduite par la présence de l'hydrogène, et, peut-être, pour une concentration d'hydrogène plus élevée. A partir d'une certaine valeur de  $\Delta K$ , après la transition des vitesses, la propagation

devient transgranulaire, avec des vitesses très élevées par rapport à l'air (nous avons mesuré jusqu'à cinq ordres de grandeurs d'augmentation). Le 15-5PH est un acier à très haute résistance, ce qui génère une contrainte hydrostatique très élevée en pointe de fissure, en particulier à forte valeur de  $K$ . Ceci peut compenser la différence de coefficient de diffusion par rapport au fer pur, tandis que la solubilité plus élevée du 15-5PH prévient le phénomène de saturation, et peut causer une propagation de la fissure même sous un chargement statique, comme montré dans le paragraphe 6.2.4. Par ailleurs, Wei [199] a montré que pour des aciers à haute résistance l'incrément des vitesses de fissuration assisté par l'environnement peut être considérée comme la superposition de la propagation « under sustained load » assistée par l'environnement sur la fatigue.

Ces similitudes des surfaces de rupture ne sont pas générées par les mêmes mécanismes de fragilisation. Le fer pur ne présente pas de propagation sous chargement statique, contrairement à l'acier 15-5PH, pour lequel on observe une augmentation des vitesses qui dépend continuellement de l'exposition, et une propagation même sous chargement statique. La valeur de  $\Delta K$  à la transition peut alors varier en fonction du type d'essai, et le temps (ou le nombre de cycles) avant la transition dépend des conditions de chargement. Nous avons montré qu'il existe un seuil de  $K$  au-delà duquel la propagation est immédiatement rapide (paragraphe 6.2.5 et Figure 6.14). Par contre, au-dessous de ce seuil, la propagation est initialement lente, et, après un certain temps d'incubation, on observe la transition des vitesses de propagation. Dans le cas du fer pur on observe la saturation des vitesses de propagation, sans superposition de l'effet statique (paragraphe 3.3.2). Lorsqu'on atteint une valeur critique de  $\Delta K$ , et si les conditions de pression d'hydrogène et de fréquence de chargement le permettent, les vitesses de propagation augmentent, mais de manière limitée. C'est alors le chargement qui gouverne la fissuration. Finalement, la propagation assistée par l'hydrogène peut être gouvernée par  $K_{max}$  ou par  $\Delta K$ , c'est-à-dire qu'elle peut être principalement contrôlée par la composante statique ou par le chargement cyclique. Ainsi, dans le cas du fer pur, c'est la valeur de  $\Delta K$ , donc la contribution cyclique, qui pilote la fissuration sous hydrogène. Par contre pour l'acier 15-5PH la propagation rapide sous hydrogène semble davantage liée à la valeur de  $K_{max}$ , à cause notamment de la superposition de la propagation statique à celle cyclique. Des essais complémentaires menés à différent rapport de charge permettraient d'éclaircir le rôle respectif de  $\Delta K$  et de  $K_{max}$  sur la transition des courbes de propagation.

Les résultats expérimentaux obtenus sur l'acier 15-5PH ont été utilisés pour le développement du modèle numérique. En plus des courbes de propagation sous différentes atmosphères et de l'observation des surfaces de rupture, un résultat original présenté ici réside dans la quantification de l'effet de l'environnement sur la plastification autour de la fissure, au moyen de la mesure de la déformation plastique hors plan (paragraphe 6.3).

Les résultats montrent en présence d'hydrogène une forte localisation de la plasticité en pointe de fissure dans le régime de propagation fortement accélérée. La taille de la zone plastifiée monotone n'est toutefois pas influencée par la présence de l'hydrogène. Nous avons montré que

l'augmentation du retrait latéral par rapport à l'essai sous air est négligeable sous 0.09 MPa. En revanche il est 2.5 fois plus élevé sous 9 MPa et 3 fois plus élevé sous 40 MPa. Cet effet est associé à la transition des vitesses de propagation, et donc à la contribution prédominante de la composante statique de la fissuration. Comme nous avons observé sur les fractographies, après la transition des vitesses de propagation on observe toujours un changement du mode de rupture. On peut alors affirmer que cette augmentation du retrait est due au changement des mécanismes de propagation de la fissure, qui se vérifie à partir de la fin de la transition des vitesses de propagation.

### 3 Conclusion sur l'évolution du modèle numérique

Des modifications ont été apportées au modèle pour rendre compte des résultats expérimentaux sur la déformation hors plan. Plus précisément, la modification des paramètres de la loi d'érouissage cinématique non-linéaire (en particulier la limite d'élasticité) en fonction de la concentration locale en hydrogène permet de représenter qualitativement les observations expérimentales sur la déformation hors plan. Plusieurs lois empiriques de réduction de la limite d'élasticité ont été testées. Pour une réduction d'un facteur 0.8 de la limite d'élasticité associée à une concentration locale supérieure à 1% de la concentration maximale (Figure 7 - 18), nous avons observé que, sous 9 MPa d'hydrogène, la taille de la zone plastifiée ne change pas, tandis que le modèle peut prédire une déformation plastique hors plan plus importante près des lèvres de la fissure d'un facteur environ 1.4 (Figure 7 - 21). La réduction de la limite d'élasticité a pour conséquence une diminution des vitesses de propagation, due à la redistribution des contraintes sur plusieurs éléments cohésifs. Dans le futur on pourra étudier l'effet de la modification d'autres paramètres de la loi d'érouissage cinématique non-linéaire sur la déformation hors plan et sur les vitesses de propagation, afin de se rapprocher des résultats expérimentaux. Réciproquement, on pourrait caractériser expérimentalement le comportement du matériau déformé cycliquement en présence d'une forte concentration en hydrogène, par exemple avec des essais de nano-indentation électrochimique in situ, à l'instar de Barnoush [217]. Ceci nous permettra de mieux comprendre l'effet de l'hydrogène sur la modification de la réponse du matériau en pointe de fissure.

Nous avons montré que les limites du modèle dans la prédiction des vitesses de propagation dans le régime fortement assisté par l'hydrogène peuvent être attribuées à une trop faible diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure (paragraphe 7.2). Nous avons alors apporté une modification qui permet d'augmenter la diffusion localement, et de simuler une accumulation de l'hydrogène. A l'instar de Yokobori et al. [213–215], nous avons étudié l'effet de l'ajout d'un « facteur multiplicatif »  $\alpha$  sur les termes du modèle de diffusion, et en particulier sur la composante due à la contrainte hydrostatique, comme montré dans le paragraphe 7.4. En l'absence de données sur la concentration réelle en pointe de fissure permettant une éventuelle identification, ce facteur multiplicatif a été choisi arbitrairement égal à 10, afin de modéliser l'amélioration de la diffusion en pointe de fissure. Ceci permet de générer une accumulation plus importante de l'hydrogène

autour de la fissure, à cause notamment de la concentration des contraintes, et de former une zone enrichie en hydrogène plus étendue, avec une concentration d'hydrogène 5 fois plus élevée dans les premiers 20  $\mu\text{m}$  au-delà de la pointe de fissure (Figure 7 - 23). La vitesse de propagation sous chargement cyclique est alors augmentée d'un facteur 1.33. Toutefois des valeurs plus précises des paramètres  $\alpha_i$  doivent être identifiées. Par exemple, le modèle, sans l'utilisation des facteurs multiplicatifs  $\alpha_i$ , peut représenter la propagation de fissure sous un chargement statique dans le cas de l'acier 15-5PH, à partir d'un seuil  $K_{I TH}$  (paragraphe 7.2.3). Les vitesses de propagation ( $da/dt$ ) simulées, qui dépendent de la quantité d'hydrogène qui diffuse en pointe de fissure, sont toutefois plus faibles de deux ordres de grandeur que les vitesses relevées expérimentalement (Figure 7 - 16). L'amélioration de la description de la diffusion grâce aux coefficients multiplicatifs  $\alpha_i$  (et en particulier  $\alpha_2$ ) pourra permettre de se rapprocher des valeurs des vitesses expérimentales sous chargement statique. Réciproquement, dans l'implémentation comportement du fer pur dans le modèle, nous pourrions identifier une loi de type Kunnick-Johnson, afin de mieux représenter les différentes populations d'hydrogène mesurées expérimentalement.

Le modèle initial, qui ne tient compte que de la réduction de l'énergie de rupture des éléments cohésifs en présence d'hydrogène, représente un mécanisme de fragilisation de type HEDE (paragraphe 1.6). Les modifications réalisées sur le modèle, à savoir l'influence de l'hydrogène sur la plasticité des éléments de bulk, et l'augmentation de la diffusion en pointe de fissure due à la contrainte hydrostatique, permettent de rendre en compte de l'action de différents mécanismes de fragilisation. L'effet de l'hydrogène sur la déformation plastique hors plan révélé expérimentalement suggère que la seule représentation du mécanisme HEDE n'est pas suffisante pour décrire l'ensemble des phénomènes induits par l'hydrogène en pointe de fissure. L'ajout de l'influence de l'hydrogène sur la plasticité du matériau, ainsi que la modification de la loi de diffusion de Krom (qu'on pourra assimiler à la contribution des mécanismes HELP et/ou AIDE, et au transport par les dislocations) ont permis d'améliorer, qualitativement, la réponse du modèle en termes de déformation plastique hors plan et de diffusion en pointe de fissure.

En conclusion, les résultats expérimentaux, associés à ceux du modèle numérique, nous ont permis d'améliorer la compréhension des mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène.

## 4 Perspectives

Concernant l'étude expérimentale, il serait important de poursuivre l'étude de l'interaction entre l'hydrogène et la plasticité cyclique (notamment la structure de déformation induite), dans le fer pur. Un essai de déformation cyclique sous hydrogène n'a pas pu être réalisé, à cause notamment de problèmes avec l'utilisation d'un extensomètre dans l'enceinte sous pression. La réalisation de cet essai, et l'observation au MET des lames minces, permettra une comparaison avec les structures de déformation obtenues à l'air, et en particulier le rôle de l'hydrogène dans la formation de dipôles. Les mesures de densité de dislocation, de perméation, et les dosages d'hydrogène permettront de définir l'effet de la présence de l'hydrogène sur la modification de la

plasticité, et d'identifier plus précisément les différentes populations d'hydrogène qui peuvent pénétrer dans le matériau en pointe de fissure.

Des essais de propagation de fissure dans le fer pur peuvent être envisagés sous faible pression d'hydrogène. Les essais pourront être menés à des valeurs de  $\Delta K$  plus élevées et à des faibles fréquences de chargement, afin d'étudier la transition de vitesses de propagation en relation avec l'évolution des surfaces de rupture. En observant les facettes de rupture intergranulaire, nous avons montré une intense activité plastique sur les joints de grains, avec des marquages réguliers. L'étude des surfaces sous-jacentes aux facettes intergranulaires, avec des observations d'une découpe dans le volume par FIB, couplées à des analyses EBSD des mêmes structures, permettra de mieux comprendre et expliquer le changement des modes de rupture observé sans modification des vitesses de propagation par rapport à l'air, et, plus en général, de mieux comprendre les mécanismes de fissuration assistée par l'hydrogène.

En ce qui concerne l'acier 15-5PH, il serait intéressant de réaliser des essais de fissuration sous forte pression d'hydrogène à haute fréquence, pour étudier le début de saturation des vitesses de propagation observé expérimentalement. De plus, des essais à faible pression et faible fréquence, ainsi que un essai statique, permettront de mieux comprendre l'évolution de la transition sur les courbes de propagation, et de préciser la notion de seuil d'exposition discutée dans le paragraphe 6.2.5. En outre, un essai sous hydrogène à différent rapport de charge, par exemple  $R = 0.1$ , pourrait confirmer les hypothèses sur le rôle de  $K_{max}$  ou  $\Delta K$  sur la transition des vitesses de propagation.

Les résultats numériques présentés dans le chapitre 7 ont montré l'importance de l'étude de la diffusion en pointe de fissure, et de l'effet de l'hydrogène sur la plasticité. A l'avenir, des modifications pourront être apportées au modèle, afin de se rapprocher des résultats sur les vitesses de propagation et sur la déformation plastique hors plan :

- La modélisation du fer pur pourrait nous aider à améliorer la loi de diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure. En effet, nous avons des données quantitatives sur la diffusion et sur les différentes populations d'hydrogène pour différentes structures déformées. L'implémentation d'un coefficient de diffusion qui dépend de la déformation plastique cumulée, et l'identification d'une loi de type Kunnick-Johnson afin de mieux représenter les différentes populations d'hydrogène, permettront une représentation plus réaliste de la diffusion.
- Ensuite, la modification du comportement du matériau, localement affecté par l'hydrogène en forte concentration, pourra être étudiée, afin de se rapprocher des résultats expérimentaux sur la déformation plastique hors plan. Le développement d'un modèle tridimensionnel serait, dans ce cas, plus approprié pour une correcte représentation de la déformation plastique hors plan. Une telle étude permettra en outre de mieux comprendre le rôle de l'hydrogène dans la modification du comportement mécanique du matériau en pointe de fissure.

- La modélisation de la microstructure pourra être envisagée dans le futur. Dans ce cas, une possible évolution pourrait être d'utiliser une approche cohésive-volumique, en positionnant des éléments cohésifs entre les différents grains et à l'intérieur de ceux-ci, avec un comportement peut-être différent vis-à-vis de l'hydrogène (forme différente de la TSL, coefficient de diffusion différent, etc.). La fissure peut ainsi avancer sur le trajet préférentiel, en fonction des conditions d'essai.

# Bibliographie

- [1] W. H. Johnson, « On some remarkable changes produced in iron and steel by the action of hydrogen and acids », *Proc. R. Soc. Lond.*, vol. 23, n° 156-163, p. 168-179, 1874.
- [2] R. P. Gangloff et B. P. Somerday, *Gaseous Hydrogen Embrittlement of Materials in Energy Technologies: Mechanisms, modelling and future developments*, vol. 2. Elsevier, 2012.
- [3] H. F. Coward et G. W. Jones, « Limits of flammability of gases and vapors », DTIC Document, 1952.
- [4] W. Payman et H. Titman, « Limits of inflammability of hydrogen and deuterium in oxygen and air », *Nature*, vol. 137, p. 190, 1936.
- [5] P. Irving et E. Almond, « Hydrogen-promoted fracture in transportable gas-container steels », *Met. Technol.*, vol. 4, p. 115-117, 1977.
- [6] J. M. Tartaglia, K. A. Lazzari, G. P. Hui, et K. L. Hayrynen, « A comparison of mechanical properties and hydrogen embrittlement resistance of austempered vs quenched and tempered 4340 steel », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 39, n° 3, p. 559-576, 2008.
- [7] ASTM F1940-07a(2014), « Standard Test Method for Process Control Verification to Prevent Hydrogen Embrittlement in Plated or Coated Fasteners », *ASTM Int. West Conshohocken PA 2014 Wwwwastmorg*.
- [8] A. C. Tseung, H. C. Chan, N. B. Fouzder, et T. Sriskandarajah, « Prevention of hydrogen embrittlement of metals in corrosive environments », déc. 1984.
- [9] G. Chalaftris, « Evaluation of aluminium-based coatings for cadmium replacement », *PhD Thesis*, 2003.
- [10] L. COUDREUSE, J. CHÊNE, et A.-M. BRASS, *Fragilisation des aciers par l'hydrogène: étude et prévention*. Ed. Techniques Ingénieur, 2008.
- [11] W. Chandler et R. Walter, « Testing to determine the effect of high-pressure hydrogen environments on the mechanical properties of metals », *Hydrog. Embrittlement Test. ASTM STP*, vol. 543, p. 170-197, 1974.
- [12] C. Moriconi, « Modélisation de la propagation de fissure de fatigue assistée par l'hydrogène gazeux dans les matériaux métalliques », PhD Thesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et Aérotechnique - Poitiers, 2012.
- [13] I. Moro, « Fragilisation par l'hydrogène gazeux d'un acier ferrito-perlitique de grade API X80 », *PhD Thesis Toulouse INPT*, 2009.
- [14] H. J. Cialone et J. H. Holbrook, « Sensitivity of steels to degradation in gaseous hydrogen », *Hydrog. Embrittlement Prev. Control ASTM STP*, vol. 962, p. 134-152, 1988.
- [15] D. Hardie, E. Charles, et A. Lopez, « Hydrogen embrittlement of high strength pipeline steels », *Corros. Sci.*, vol. 48, n° 12, p. 4378-4385, 2006.
- [16] K. Xu, « Evaluation of API 5L X80 in high pressure hydrogen gas », *ASTM G1*, vol. 6, 2005.
- [17] H. Matsui, H. Kimura, et S. Moriya, « The effect of hydrogen on the mechanical properties of high purity iron I. Softening and hardening of high purity iron by hydrogen charging during tensile deformation », *Mater. Sci. Eng.*, vol. 40, n° 2, p. 207-216, 1979.
- [18] D. Ulmer et C. Altstetter, « Hydrogen-induced strain localization and failure of austenitic stainless steels at high hydrogen concentrations », *Acta Metall. Mater.*, vol. 39, n° 6, p. 1237-1248, 1991.
- [19] A. Sato, Y. Nakamura, et T. Mori, « Solid solution softening in Fe N alloy single crystals », *Acta Metall.*, vol. 28, n° 8, p. 1077-1083, 1980.
- [20] R. Kirchheim, « Solid solution softening and hardening by mobile solute atoms with special focus on hydrogen », *Scr. Mater.*, vol. 67, n° 9, p. 767-770, 2012.
- [21] H. Kimura et H. Matsui, « Mechanism of hydrogen-induced softening and hardening in iron », *Scr. Metall.*, vol. 21, n° 3, p. 319-324, 1987.

- [22] C. San Marchi et B. P. Somerday, « Technical reference on hydrogen compatibility of materials », *SAND2008-1163 Sandia Natl. Lab. Livermore CA*, 2008.
- [23] H. Hassan, « Energy analysis and performance evaluation of the adsorption refrigeration system », *ISRN Mech. Eng.*, vol. 2013, 2013.
- [24] S. Serebrinsky, « A quantum-mechanically informed continuum model of hydrogen embrittlement », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 52, n° 10, p. 2403-2430, oct. 2004.
- [25] W. Gerberich, X. Chen, et M. Kaczorowski, « Crack growth from internal hydrogen—Temperature and microstructural effects in 4340 steel », *Metall. Trans. A*, vol. 19, n° 5, p. 1319-1334, 1988.
- [26] J. P. Hirth, « Effects of hydrogen on the properties of iron and steel », *Metall. Trans. A*, vol. 11, n° 6, p. 861-890, 1980.
- [27] C. Moriconi, G. Henaff, et D. Halm, « Influence of hydrogen coverage on the parameters of a cohesive zone model dedicated to fatigue crack propagation », *Procedia Eng.*, vol. 10, p. 2657-2662, 2011.
- [28] C. Moriconi, G. Hénaff, et D. Halm, « Cohesive zone modeling of fatigue crack propagation assisted by gaseous hydrogen in metals », *Int. J. Fatigue*, vol. 68, p. 56-66, 2014.
- [29] D. Jiang et E. A. Carter, « Diffusion of interstitial hydrogen into and through bcc Fe from first principles », *Phys. Rev. B*, vol. 70, n° 6, p. 064102, 2004.
- [30] A. Sieverts et W. Krumbhaar, « Über die Löslichkeit von gasen in Metallen und Legierungen », *Berichte Dtsch. Chem. Ges.*, vol. 43, n° 1, p. 893-900, 1910.
- [31] P. Tison, « Influence de l'hydrogene sur le comportement des métaux », *Rapp. CEA R-5240 Serv. Doc. CEA Saclay Eds*, 1984.
- [32] J. Crank, *The mathematics of diffusion*. Oxford university press, 1979.
- [33] J. Li, R. Oriani, et L. Darken, « The thermodynamics of stressed solids », *Z. Für Phys. Chem.*, vol. 49, n° 3\_5, p. 271-290, 1966.
- [34] T. Heumann et D. Primas, « On the Isotope Effect in the Diffusion of Hydrogen and Deuterium in Pure Iron », *Z Naturforsch A*, vol. 21, p. 260-265, 1966.
- [35] R. C. Frank, D. E. Swets, et D. L. Fry, « Mass spectrometer measurements of the diffusion coefficient of hydrogen in steel in the temperature range of 25–90° C », *J. Appl. Phys.*, vol. 29, n° 6, p. 892-898, 1958.
- [36] A. Kumnick et H. Johnson, « Hydrogen and deuterium in iron, 9–73° C », *Acta Metall.*, vol. 25, n° 8, p. 891-895, 1977.
- [37] N. Quick et H. Johnson, « Hydrogen and deuterium in iron, 49–506 C », *Acta Metall.*, vol. 26, n° 6, p. 903-907, 1978.
- [38] A. Kumnick et H. Johnson, « Hydrogen transport through annealed and deformed Armco iron », *Metall. Trans.*, vol. 5, n° 5, p. 1199-1206, 1974.
- [39] R. A. Oriani, « The diffusion and trapping of hydrogen in steel », *Acta Metall.*, vol. 18, n° 1, p. 147-157, 1970.
- [40] H. Huntington, A. Nowick, et J. Burton, « Diffusion in solids: recent developments », *Nowick JJ Burton Acad. Press N. Y. 1975 Chap*, vol. 6, 1975.
- [41] G. Schaumann, J. Völki, et G. Alefeld, « The diffusion coefficients of hydrogen and deuterium in vanadium, niobium, and tantalum by gorsky-effect measurements », *Phys. Status Solidi B*, vol. 42, n° 1, p. 401-413, 1970.
- [42] P. Sofronis et R. M. McMeeking, « Numerical analysis of hydrogen transport near a blunting crack tip », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 37, n° 3, p. 317-350, 1989.
- [43] V. Olden, C. Thaulow, et R. Johnsen, « Modelling of hydrogen diffusion and hydrogen induced cracking in supermartensitic and duplex stainless steels », *Mater. Des.*, vol. 29, n° 10, p. 1934-1948, déc. 2008.

- [44] A.-M. Brass, J. Chêne, et L. Coudreuse, « Fragilisation des aciers par l'hydrogène: étude et prévention », *Tech. L'ingénieur*, vol. 175, p. 1-24, 2000.
- [45] W. Choo et J. Y. Lee, « Thermal analysis of trapped hydrogen in pure iron », *Metall. Trans. A*, vol. 13, n° 1, p. 135-140, 1982.
- [46] A. J. Kumnick et H. H. Johnson, « Deep trapping states for hydrogen in deformed iron », *Acta Metall.*, vol. 28, n° 1, p. 33-39, janv. 1980.
- [47] G. Pressouyre, « A classification of hydrogen traps in steel », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 10, n° 10, p. 1571-1573, 1979.
- [48] G. Pressouyre et I. Bernstein, « A quantitative analysis of hydrogen trapping », *Metall. Trans. A*, vol. 9, n° 11, p. 1571-1580, 1978.
- [49] H. Wada et K. Sakamoto, « Specific heat of the iron-hydrogen system at low temperatures », *Scr. Metall.*, vol. 13, n° 7, p. 573-575, 1979.
- [50] H. Hagi, Y. Hayashi, et N. Ohtani, « Diffusion coefficient of hydrogen in pure iron between 230 and 300 K », *Trans. Jpn. Inst. Met.*, vol. 20, n° 7, p. 349-357, 1979.
- [51] F. Vucko, « Etude expérimentale et modélisation des effets de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques et le comportement en fatigue d'un acier à haute limite d'élasticité », Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2014.
- [52] D. P. Escobar, T. Depover, E. Wallaert, L. Duprez, M. Verhaege, et K. Verbeken, « Thermal desorption spectroscopy study of the interaction between hydrogen and different microstructural constituents in lab cast Fe-C alloys », *Corros. Sci.*, vol. 65, p. 199-208, 2012.
- [53] D. P. Escobar, K. Verbeken, L. Duprez, et M. Verhaege, « Evaluation of hydrogen trapping in high strength steels by thermal desorption spectroscopy », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 551, p. 50-58, 2012.
- [54] D. P. Escobar, T. Depover, L. Duprez, K. Verbeken, et M. Verhaege, « Combined thermal desorption spectroscopy, differential scanning calorimetry, scanning electron microscopy and X-ray diffraction study of hydrogen trapping in cold deformed TRIP steel », *Acta Mater.*, vol. 60, n° 6-7, p. 2593-2605, avr. 2012.
- [55] A. H. M. Krom, R. W. J. Koers, et A. Bakker, « Hydrogen transport near a blunting crack tip », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 47, n° 4, p. 971-992, 1999.
- [56] A. H. M. Krom, H. J. Maier, R. W. J. Koers, et A. Bakker, « The effect of strain rate on hydrogen distribution in round tensile specimens », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 271, n° 1, p. 22-30, 1999.
- [57] Y. Murakami, T. Kanazaki, Y. Mine, et S. Matsuoka, « Hydrogen embrittlement mechanism in fatigue of austenitic stainless steels », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 39, n° 6, p. 1327-1339, 2008.
- [58] Y. Murakami et H. Matsunaga, « The effect of hydrogen on fatigue properties of steels used for fuel cell system », *Int. J. Fatigue*, vol. 28, n° 11, p. 1509-1520, 2006.
- [59] S. Lynch et N. Ryan, « Mechanisms of Hydrogen Embrittlement-Crack Growth in a Low-Alloy Ultra-High-Strength Steel Under Cyclic and Sustained Stresses in Gaseous Hydrogen », DTIC Document, 1978.
- [60] S. Lynch, « Mechanisms of hydrogen assisted cracking-A review », *Hydrog. Eff. Mater. Behav. Corros. Deform. Interact.*, p. 449-466, 2003.
- [61] M. Knop, R. Byrnes, et S. Lynch, « Hydrogen assisted fatigue crack growth in structural steels in aqueous and gaseous hydrogen environments », *2nd International Conference on Metals and Hydrogen*, Gent, Belgium, p. 155-176, 2014.
- [62] C. San Marchi, B. P. Somerday, K. A. Nibur, D. G. Stalheim, T. Boggess, et S. Jansto, « Fracture and fatigue of commercial grade API pipeline steels in gaseous hydrogen », présenté à ASME 2010 Pressure Vessels and Piping Division/K-PVP Conference, 2010, p. 939-948.
- [63] R. Gangloff et B. Somerday, *Gaseous Hydrogen Embrittlement of Materials in Energy Technologies: Mechanisms, modelling and future developments*, vol. 2. Elsevier, 2012.

- [64] S. Lynch, « Metallographic and fractographic techniques for characterising and understanding hydrogen-assisted cracking of metals », *Gaseous Hydrog. Embrittlement Mater. Energy Technol. Vol. 1 Probl. Its Characterisation Eff. Part. Alloy Cl.*, p. 274-346, 2012.
- [65] B. Somerday, P. Sofronis, et R. Jones, « Effects of hydrogen on materials », *Jackson Hole WY ASM Int.*, 2009.
- [66] K. Shin et M. Meshii, « Effect of sulfur segregation and hydrogen charging on intergranular fracture of iron », *Acta Metall.*, vol. 31, n° 10, p. 1559-1566, 1983.
- [67] S. K. Banerji, C. J. McMahon, et H. C. Feng, « Intergranular fracture in 4340-type steels: effects of impurities and hydrogen », *Metall. Trans. A*, vol. 9, n° 2, p. 237-247, 1978.
- [68] C. McMahon, « Hydrogen-induced intergranular fracture of steels », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 68, n° 6, p. 773-788, 2001.
- [69] Z. Sun, G. Benoit, C. Moriconi, F. Hamon, D. Halm, F. Hamon, et G. Hénaff, « Fatigue crack propagation under gaseous hydrogen in a precipitation-hardened martensitic stainless steel », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 36, n° 14, p. 8641-8644, juill. 2011.
- [70] G. Schuster et C. Altstetter, « Fatigue of stainless steel in hydrogen », *Metall. Trans. A*, vol. 14, n° 10, p. 2085-2090, 1983.
- [71] Y. Oda et H. Noguchi, « Observation of hydrogen effects on fatigue crack growth behaviour in an 18Cr-8Ni austenitic stainless steel », *Int. J. Fract.*, vol. 132, n° 2, p. 99-113, 2005.
- [72] Y. ea Aoki, K. Kawamoto, Y. Oda, H. Noguchi, et K. Higashida, « Fatigue characteristics of a type 304 austenitic stainless steel in hydrogen gas environment », *Int. J. Fract.*, vol. 133, n° 3, p. 277-288, 2005.
- [73] E. Drexler, A. Slifka, R. Amaro, N. Barbosa, D. Lauria, L. Hayden, et D. Stalheim, « Fatigue crack growth rates of API X70 pipeline steel in a pressurized hydrogen gas environment », *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, vol. 37, n° 5, p. 517-525, 2014.
- [74] N. Saintier, T. Awane, J. Olive, S. Matsuoka, et Y. Murakami, « Analyses of hydrogen distribution around fatigue crack on type 304 stainless steel using secondary ion mass spectrometry », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 36, n° 14, p. 8630-8640, 2011.
- [75] Z. Sun, C. Moriconi, G. Benoit, D. Halm, et G. Henaff, « Fatigue Crack Growth under High Pressure of Gaseous Hydrogen in a 15-5PH Martensitic Stainless Steel: Influence of Pressure and Loading Frequency », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 44, n° 3, p. 1320-1330, mars 2013.
- [76] P. Novak, R. Yuan, B. Somerday, P. Sofronis, et R. Ritchie, « A statistical, physical-based, micro-mechanical model of hydrogen-induced intergranular fracture in steel », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 58, n° 2, p. 206-226, 2010.
- [77] A. Troiano, « The role of hydrogen and other interstitials in the mechanical behavior of metals », *Trans ASM*, vol. 52, n° 1, p. 54-80, 1960.
- [78] C. Beachem, « A new model for hydrogen-assisted cracking (hydrogen “embrittlement”) », *Metall. Trans.*, vol. 3, n° 2, p. 441-455, 1972.
- [79] H. K. Birnbaum et P. Sofronis, « Hydrogen-enhanced localized plasticity—a mechanism for hydrogen-related fracture », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 176, n° 1, p. 191-202, 1994.
- [80] S. Lynch, « Hydrogen embrittlement and liquid-metal embrittlement in nickel single crystals », *Scr. Metall.*, vol. 13, n° 11, p. 1051-1056, 1979.
- [81] S. Lynch, « Environmentally assisted cracking: overview of evidence for an adsorption-induced localised-slip process », *Acta Metall.*, vol. 36, n° 10, p. 2639-2661, 1988.
- [82] S. Lynch, « Comments on “A unified model of environment-assisted cracking” », *Scr. Mater.*, vol. 61, n° 3, p. 331-334, 2009.

- [83] S. P. Lynch, « Mechanisms and Kinetics of Environmentally Assisted Cracking: Current Status, Issues, and Suggestions for Further Work », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 44, n° 3, p. 1209-1229, mars 2013.
- [84] L. Pfeil, « The effect of occluded hydrogen on the tensile strength of iron », *Proc. R. Soc. Lond. Ser. Contain. Pap. Math. Phys. Character*, p. 182-195, 1926.
- [85] R. Oriani, « A mechanistic theory of hydrogen embrittlement of steels », *Berichte Bunsenges. Für Phys. Chem.*, vol. 76, n° 8, p. 848-857, 1972.
- [86] R. Oriani et P. Josephic, « Equilibrium and kinetic studies of the hydrogen-assisted cracking of steel », *Acta Metall.*, vol. 25, n° 9, p. 979-988, 1977.
- [87] R. Oriani, « Whitney Award Lecture-1987: Hydrogen-The Versatile Embrittler », *Corrosion*, vol. 43, n° 7, p. 390-397, 1987.
- [88] I. M. Robertson, P. Sofronis, A. Nagao, M. Martin, S. Wang, D. Gross, et K. Nygren, « Hydrogen Embrittlement Understood », *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 46, n° 3, p. 1085-1103, 2015.
- [89] S. Bechtle, M. Kumar, B. P. Somerday, M. E. Launey, et R. O. Ritchie, « Grain-boundary engineering markedly reduces susceptibility to intergranular hydrogen embrittlement in metallic materials », *Acta Mater.*, vol. 57, n° 14, p. 4148-4157, 2009.
- [90] M. Martin, B. Somerday, R. Ritchie, P. Sofronis, et I. Robertson, « Hydrogen-induced intergranular failure in nickel revisited », *Acta Mater.*, vol. 60, n° 6, p. 2739-2745, 2012.
- [91] M. Nagumo et H. Matsuda, « Function of hydrogen in intergranular fracture of martensitic steels », *Philos. Mag. A*, vol. 82, n° 17-18, p. 3415-3425, 2002.
- [92] S. Wang, M. L. Martin, P. Sofronis, S. Ohnuki, N. Hashimoto, et I. M. Robertson, « Hydrogen-induced intergranular failure of iron », *Acta Mater.*, vol. 69, p. 275-282, mai 2014.
- [93] H. K. Birnbaum, « Mechanisms of hydrogen related fracture of metals », DTIC Document, 1989.
- [94] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, « Hydrogen-enhanced localization of plasticity in an austenitic stainless steel », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 26, n° 11, p. 2859-2871, 1995.
- [95] I. Robertson, « The effect of hydrogen on dislocation dynamics », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 68, n° 6, p. 671-692, 2001.
- [96] S. Lynch, « Metallographic contributions to understanding mechanisms of environmentally assisted cracking », *Metallography*, vol. 23, n° 2, p. 147-171, 1989.
- [97] S. Lynch, « Mechanisms of hydrogen assisted cracking-A review », *Hydrog. Eff. Mater. Behav. Corros. Deform. Interact.*, p. 449-466, 2003.
- [98] M. S. Daw et M. I. Baskes, « Application of the Embedded Atom Method to Hydrogen Embrittlement », in *Chemistry and physics of fracture*, Springer, 1987, p. 196-218.
- [99] R. Hoagland et H. Heinisch, « An atomic simulation of the influence of hydrogen on the fracture behavior of nickel », *J. Mater. Res.*, vol. 7, n° 08, p. 2080-2088, 1992.
- [100] A. Taha et P. Sofronis, « A micromechanics approach to the study of hydrogen transport and embrittlement », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 68, n° 6, p. 803-837, 2001.
- [101] P. Sofronis, « The influence of mobility of dissolved hydrogen on the elastic response of a metal », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 43, n° 9, p. 1385-1407, 1995.
- [102] A. McNabb et P. Foster, « A new analysis of the diffusion of hydrogen in iron and ferritic steels », *Trans Aime*, vol. 227, p. 618, 1963.
- [103] U. Hadam et T. Zakroczymski, « Absorption of hydrogen in tensile strained iron and high-carbon steel studied by electrochemical permeation and desorption techniques », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 34, n° 5, p. 2449-2459, mars 2009.
- [104] Y. Mine, J.-M. Olive, K. Nagata, et T. Mitsutani, « Hydrogen effect on cyclic plasticity and crack growth in coarse-grained iron », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 528, n° 28, p. 8090-8099, oct. 2011.

- [105] M. Itakura, H. Kaburaki, M. Yamaguchi, et T. Okita, « The effect of hydrogen atoms on the screw dislocation mobility in bcc iron: A first-principles study », *Acta Mater.*, vol. 61, n° 18, p. 6857-6867, oct. 2013.
- [106] Jeklih, « Absorption and diffusion of hydrogen in steels », *Mater. Tehnol.*, vol. 34, n° 6, p. 331, 2000.
- [107] C.E. Jackson, *Metallurgy and Weldability of Steels*. Welding Research Council, 1978.
- [108] J. M. Radzikowska, « Effect of specimen preparation on evaluation of cast iron microstructures », *Mater. Charact.*, vol. 54, n° 4-5, p. 287-304, mai 2005.
- [109] E. Bonnot, A.-L. Helbert, F. Brisset, et T. Baudin, « Microstructure and texture evolution during the ultra grain refinement of the Armco iron deformed by accumulative roll bonding (ARB) », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 561, p. 60-66, janv. 2013.
- [110] ASTM E112-13, « Standard Test Methods for Determining Average Grain Size ». ASTM International, West Conshohocken, PA, , [www.astm.org](http://www.astm.org)-2013.
- [111] R. Napolitano, « Measurement of ASTM grain size number », *Mater. Sci. Eng. Iowa State Univ. Available Online Httpmse Iastate Edu*, 2010.
- [112] M. Hölscher, D. Raabe, et K. Lücke, « Rolling and recrystallization textures of bcc steels », *Steel Res. Int.*, n° 62, p. 567-575, 1991.
- [113] J. Fundenberger et B. Beausir, *Univ. Lorraine - Metz, JTEX - Software for Texture Analysis*, <http://jtex-software.eu> 2015.
- [114] R. Hielscher et H. Schaeben, « MTEX », *J Appl. Crystallogr.*, n° 41, p. 1024, <https://www-user.tu-chemnitz.de/~rahi/software.php> 2008.
- [115] L. Priester, *Grain boundaries: from theory to engineering*, vol. 172. Springer Science & Business Media, 2012.
- [116] A. Oudriss, J. Creus, J. Bouhattate, E. Conforto, C. Berziou, C. Savall, et X. Feaugas, « Grain size and grain-boundary effects on diffusion and trapping of hydrogen in pure nickel », *Acta Mater.*, vol. 60, n° 19, p. 6814-6828, 2012.
- [117] ASTM E8 / E8M-15a, « Standard Test Methods for Tension Testing of Metallic Materials ». ASTM International, West Conshohocken, PA, 2015.
- [118] J. P. Bailon et J. M. Dorlot, « Influence des traitements thermiques sur la relation de hall2petch pour le fer ARMCO », *Acta Metall.*, vol. 19, n° 2, p. 71-84, févr. 1971.
- [119] C. Zener et J. Hollomon, « Effect of strain rate upon plastic flow of steel », *J. Appl. Phys.*, vol. 15, n° 1, p. 22-32, 1944.
- [120] R. W. Armstrong et S. M. Walley, « High strain rate properties of metals and alloys », *Int. Mater. Rev.*, vol. 53, n° 3, p. 105-128, 2008.
- [121] V. Tvergaard et A. Needleman, « Analysis of the cup-cone fracture in a round tensile bar », *Acta Metall.*, vol. 32, n° 1, p. 157-169, 1984.
- [122] R. Fields, T. Weerasooriya, et M. Ashby, « Fracture-mechanisms in pure iron, two austenitic steels, and one ferritic steel », *Metall. Trans. A*, vol. 11, n° 2, p. 333-347, 1980.
- [123] K. Puttick, « Ductile fracture in metals », *Philos. Mag.*, vol. 4, n° 44, p. 964-969, 1959.
- [124] ASTM E647-13ae1, « Standard Test Method for Measurement of Fatigue Crack Growth Rates ». ASTM International, West Conshohocken, PA, 2013.
- [125] S. Forth, J. Newman Jr, et R. Forman, « Anomalous Fatigue Crack Growth Data Generated Using the ASTM Standards », *J. ASTM Int.*, vol. 3, n° 3, 2006.
- [126] K. Garr et G. Hresko III, « A size effect on the fatigue crack growth rate threshold of alloy 718 », *Fatigue Crack Growth Thresholds Endur. Limits Des.*, p. 155-174, 2000.

- [127] S. Castagnet, J.-C. Grandidier, M. Comyn, et G. Benoît, « Hydrogen influence on the tensile properties of mono and multi-layer polymers for gas distribution », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 35, n° 14, p. 7633-7640, juill. 2010.
- [128] R. Pippan, G. Haas, et H. Stüwe, « Comparison of two methods to measure crack closure in ultra-high vacuum », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 34, n° 5, p. 1075-1084, 1989.
- [129] R. Pippan, « Threshold and effective threshold of fatigue crack propagation in ARMCO iron II: The influence of environment », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 138, n° 1, p. 15-22, mai 1991.
- [130] W. Elber, « Fatigue crack closure under cyclic tension », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 2, n° 1, p. 37-45, 1970.
- [131] A. Vasudeven, K. Sadananda, et N. Louat, « A review of crack closure, fatigue crack threshold and related phenomena », *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 188, n° 1, p. 1-22, 1994.
- [132] J. Petit, « Some aspects of near-threshold crack growth: microstructural and environmental effects », *Metall. Soc. AIME N. Y.*, p. 3-24, 1984.
- [133] J. Petit, G. Henaff, et C. Sarrazin-Baudoux, « Environmentally assisted fatigue in the gaseous atmosphere », *Compr. Struct. Integr. Environ. Assist. Fract. Elsevier N. Y. NY*, p. 211-280, 2003.
- [134] Y. Murakami, T. Kanezaki, et Y. Mine, « Hydrogen effect against hydrogen embrittlement », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 41, n° 10, p. 2548-2562, 2010.
- [135] R. L. Amaro, N. Rustagi, K. O. Findley, E. S. Drexler, et A. J. Slifka, « Modeling the fatigue crack growth of X100 pipeline steel in gaseous hydrogen », *Int. J. Fatigue*, vol. 59, p. 262-271, févr. 2014.
- [136] Y. Wada, « Material selection and safety validation of steel tanks for hydrogen station », *ASME 2014 Press. Vessels Pip. Conf. PVP2014 Anaheim Calif.*
- [137] A. J. Slifka, E. S. Drexler, N. E. Nanninga, Y. S. Levy, J. D. McColskey, R. L. Amaro, et A. E. Stevenson, « Fatigue crack growth of two pipeline steels in a pressurized hydrogen environment », *Corros. Sci.*, vol. 78, p. 313-321, 2014.
- [138] M. Knop, N. Birbilis, et S. Lynch, « Effects of Waveform and Cycle Period on Corrosion-Fatigue Crack Growth in Cathodically Protected High-Strength Steels », présenté à Advanced Materials Research, 2014, vol. 891, p. 211-216.
- [139] P. Lam, R. Sindelar, A. Duncan, et T. Adams, « Literature survey of gaseous hydrogen effects on the mechanical properties of carbon and low alloy steels », *J. Press. Vessel Technol.*, vol. 131, n° 4, p. 041408, 2009.
- [140] P. Smith et A. Stewart, « Effect of aqueous and hydrogen environments on fatigue crack growth in 2Ni-Cr-Mo-V rotor steel », *Met. Sci.*, vol. 13, n° 7, p. 429-435, 1979.
- [141] ASTM E606 / E606M-12, « Standard Test Method for Strain-Controlled Fatigue Testing ». ASTM International, West Conshohocken, PA, 2012.
- [142] M. G. da Silva et K. T. Ramesh, « The rate-dependent deformations of porous pure iron », *Int. J. Plast.*, vol. 13, n° 6-7, p. 587-610, 1997.
- [143] J. Harding, « The effect of grain size and strain rate on the Lower yield stress of pure iron at 288 K », *Acta Metall.*, vol. 17, n° 8, p. 949-958, 1969.
- [144] H. Roven et E. Nes, « Cyclic deformation of ferritic steel—I. Stress-strain response and structure evolution », *Acta Metall. Mater.*, vol. 39, n° 8, p. 1719-1733, 1991.
- [145] H.-F. Chai et C. Laird, « Mechanisms of cyclic softening and cyclic creep in low carbon steel », *Mater. Sci. Eng.*, vol. 93, p. 159-174, 1987.
- [146] H. Mughrabi, K. Herz, et X. Stark, « Cyclic deformation and fatigue behaviour of  $\alpha$ -iron mono- and polycrystals », *Int. J. Fract.*, vol. 17, n° 2, p. 193-220, 1981.
- [147] H. Mughrabi, R. Wang, N. Hansen, A. Horsewell, T. Leffers, et H. Lilholt, « Deformation of polycrystals: mechanisms and microstructures », présenté à Proc. 2nd Risø Int. Symp. on

Metallurgy and Materials Science, N. Hansen, A. Horsewell, T. Leffers, and H. Lilholt, eds., Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark, 1981, p. 87-98.

- [148] L. Bairstow, « The elastic limits of iron and steel under cyclical variations of stress », *Philos. Trans. R. Soc. Lond. Ser. Contain. Pap. Math. Phys. Character*, p. 35-55, 1911.
- [149] X. Feaugas et C. Gaudin, « Ratchetting process in the stainless steel AISI 316L at 300 K: an experimental investigation », *Int. J. Plast.*, vol. 20, n° 4, p. 643-662, 2004.
- [150] Y. Jiang et H. Sehitoglu, « Multiaxial cyclic ratchetting under multiple step loading », *Int. J. Plast.*, vol. 10, n° 8, p. 849-870, 1994.
- [151] T. Hassan et S. Kyriakides, « Ratcheting in cyclic plasticity, part I: uniaxial behavior », *Int. J. Plast.*, vol. 8, n° 1, p. 91-116, 1992.
- [152] L. Djimli, « Analyse du phénomène de rochet: essais et modélisation », Thèse de doctorat, INSA de Rouen, Université de Mentouri, 2010.
- [153] A. H. Cottrell et D. Dexter, « Dislocations and plastic flow in crystals », *Am. J. Phys.*, vol. 22, n° 4, p. 242-243, 1954.
- [154] J. I. Dickson, J. Boutin, et L. Handfield, « A comparison of two simple methods for measuring cyclic internal and effective stresses », *Mater. Sci. Eng.*, vol. 64, n° 1, p. L7-L11, mai 1984.
- [155] X. Feaugas, « On the origin of the tensile flow stress in the stainless steel AISI 316L at 300 K: back stress and effective stress », *Acta Mater.*, vol. 47, n° 13, p. 3617-3632, 1999.
- [156] P. Gilormini, B. Bacroix, et J. Jonas, « Theoretical analyses of  $\langle 111 \rangle$  pencil glide in bcc crystals », *Acta Metall.*, vol. 36, n° 2, p. 231-256, 1988.
- [157] W. F. Hosford, « The mechanics of crystals and textured polycrystals », *Oxf. Univ. Press. 1993*, p. 248, 1993.
- [158] M. A. Meyers et K. K. Chawla, *Mechanical behavior of materials*, vol. 2. Cambridge University Press Cambridge, 2009.
- [159] C. S. Smith et L. Guttman, « Measurement of internal boundaries in three-dimensional structures by random sectioning », *Trans Aime*, vol. 197, n° 81, 1953.
- [160] J. Bockris et M. Fullenwider, « The electro-permeation of hydrogen into metals », *Electrochimica Acta*, vol. 15, n° 1, p. 47-60, 1970.
- [161] M. Devanathan et Z. Stachurski, « The adsorption and diffusion of electrolytic hydrogen in palladium », présenté à Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 1962, vol. 270, p. 90-102.
- [162] J. McBreen, L. Nonis, et W. Beck, « A method for determination of the permeation rate of hydrogen through metal membranes », *J. Electrochem. Soc.*, vol. 113, n° 11, p. 1218-1222, 1966.
- [163] N. Boes et H. Züchner, « Electrochemical methods for studying diffusion, permeation and solubility of hydrogen in metals », *J. Common Met.*, vol. 49, p. 223-240, 1976.
- [164] H. Addach, P. Berçot, M. Rezrazi, et J. Takadoum, « Study of the electrochemical permeation of hydrogen in iron », *Corros. Sci.*, vol. 51, n° 2, p. 263-267, 2009.
- [165] T. Zakroczymski, « Adaptation of the electrochemical permeation technique for studying entry, transport and trapping of hydrogen in metals », *Electrochimica Acta*, vol. 51, n° 11, p. 2261-2266, 2006.
- [166] A. Oudriss, « Influence des hétérogénéités métallurgiques sur les processus de diffusion et de piégeage de l'hydrogène dans le nickel », 2012.
- [167] S. Frappart, « Des éléments de compréhension sur les mécanismes de transport et de ségrégation de l'hydrogène dans les aciers martensitiques trempés et revenus à haute limite d'élasticité », 2011.
- [168] K. Kiuchi et R. McLellan, « The solubility and diffusivity of hydrogen in well-annealed and deformed iron », *Acta Metall.*, vol. 31, n° 7, p. 961-984, 1983.

- [169] P. Kedzierzawski, « Diffusivity of hydrogen and its isotopes in iron alloys », *Noyes Publ. Hydrog. Degrad. Ferr. Alloys*, p. 251-270, 1985.
- [170] J. R. Rice, « A path independent integral and the approximate analysis of strain concentration by notches and cracks », *J. Appl. Mech.*, vol. 35, n° 2, p. 379-386, 1968.
- [171] K. Kishimoto, S. Aoki, et M. Sakata, « Dynamic stress intensity factors using J-integral and finite element method », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 13, n° 2, p. 387-394, 1980.
- [172] J. Newman Jr, « An elastic-plastic finite element analysis of crack initiation, stable crack growth, and instability », *ASTM STP*, vol. 833, p. 93-117, 1984.
- [173] A. L. Gurson, « Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth: Part I—Yield criteria and flow rules for porous ductile media », *J. Eng. Mater. Technol.*, vol. 99, n° 1, p. 2-15, 1977.
- [174] J. Lemaitre, « A continuous damage mechanics model for ductile fracture », *J. Eng. Mater. Technol.*, vol. 107, n° 1, p. 83-89, 1985.
- [175] F. Hamon, G. Henaff, D. Halm, M. Gueguen, et T. Billaudeau, « A damage model for fatigue crack propagation from moderate to high  $\Delta K$  levels », *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, vol. 35, n° 2, p. 160-172, 2012.
- [176] T. Elguedj, A. Gravouil, et A. Combescure, « Appropriate extended functions for X-FEM simulation of plastic fracture mechanics », *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.*, vol. 195, n° 7, p. 501-515, 2006.
- [177] N. Sukumar, N. Moës, B. Moran, et T. Belytschko, « Extended finite element method for three-dimensional crack modelling », *Int. J. Numer. Methods Eng.*, vol. 48, n° 11, p. 1549-1570, 2000.
- [178] D. Dugdale, « Yielding of steel sheets containing slits », *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 8, n° 2, p. 100-104, 1960.
- [179] G. I. Barenblatt, « The mathematical theory of equilibrium cracks in brittle fracture », *Adv. Appl. Mech.*, vol. 7, n° 1, p. 55-129, 1962.
- [180] I. Scheider, « Cohesive model for crack propagation analyses of structures with elastic-plastic material behavior Foundations and implementation », *GKSS Res. Cent. Geesthacht*, 2001.
- [181] A. Hillerborg, M. Modéer, et P.-E. Petersson, « Analysis of crack formation and crack growth in concrete by means of fracture mechanics and finite elements », *Cem. Concr. Res.*, vol. 6, n° 6, p. 773-781, 1976.
- [182] J. L. Bouvard, J. L. Chaboche, F. Feyel, et F. Gallerneau, « A cohesive zone model for fatigue and creep-fatigue crack growth in single crystal superalloys », *Int. J. Fatigue*, vol. 31, n° 5, p. 868-879, mai 2009.
- [183] I. Scheider, M. Pfuff, et W. Dietzel, « Simulation of hydrogen assisted stress corrosion cracking using the cohesive model », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 75, n° 15, p. 4283-4291, oct. 2008.
- [184] I. Scheider et W. Brocks, « Cohesive elements for thin-walled structures », *Comput. Mater. Sci.*, vol. 37, n° 1-2, p. 101-109, août 2006.
- [185] O. Nguyen, E. Repetto, M. Ortiz, et R. Radovitzky, « A cohesive model of fatigue crack growth », *Int. J. Fract.*, vol. 110, n° 4, p. 351-369, 2001.
- [186] I. Scheider et W. Brocks, « The effect of the traction separation law on the results of cohesive zone crack propagation analyses », présenté à Key Engineering Materials, 2003, vol. 251, p. 313-318.
- [187] K. L. Roe et T. Siegmund, « An irreversible cohesive zone model for interface fatigue crack growth simulation », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 70, n° 2, p. 209-232, janv. 2003.
- [188] W. Brocks, R. Falkenberg, et I. Scheider, « Coupling aspects in the simulation of hydrogen-induced stress-corrosion cracking », *Procedia IUTAM*, vol. 3, p. 11-24, 2012.

- [189] V. Olden, A. Alvaro, et O. M. Akselsen, « Hydrogen diffusion and hydrogen influenced critical stress intensity in an API X70 pipeline steel welded joint—Experiments and FE simulations », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 37, n° 15, p. 11474-11486, 2012.
- [190] A. Van der Ven et G. Ceder, « The thermodynamics of decohesion », *Acta Mater.*, vol. 52, n° 5, p. 1223-1235, 2004.
- [191] A. Van der Ven et G. Ceder, « Impurity-induced van der Waals transition during decohesion », *Phys. Rev. B*, vol. 67, n° 6, p. 060101, 2003.
- [192] A. Turon, P. P. Camanho, J. Costa, et C. Dávila, « A damage model for the simulation of delamination in advanced composites under variable-mode loading », *Mech. Mater.*, vol. 38, n° 11, p. 1072-1089, 2006.
- [193] J. Lemaitre, J.-L. Chaboche, A. Benallal, et R. Desmorat, *Mécanique des matériaux solides-3eme édition*. Dunod, 2009.
- [194] D. Hibbitt, B. Karlsson, et P. Sorensen, « ABAQUS/Standard User's Manual, version 6.4, ABAQUS », *Inc Pawtuck. RI*, 2003.
- [195] F. Hamon, « Modélisation du comportement mécanique en fissuration d'alliages aéronautiques », PhD Thesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et Aérotechnique - Poitiers, 2010.
- [196] R. McClung et H. Sehitoglu, « On the finite element analysis of fatigue crack closure—1. Basic modeling issues », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 33, n° 2, p. 237-252, 1989.
- [197] C. Murray, « Hydrogen embrittlement of 15-5 PH stainless steels », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 12, n° 12, p. 2138-2141, 1981.
- [198] J. H. Kwon, « Influence de l'environnement sur le comportement en fatigue d'un acier E 460 et d'un alliage léger 7075 près du seuil de fissuration », PhD Thesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et Aérotechnique - Poitiers, 1985.
- [199] R. Wei, « Some aspects of environment-enhanced fatigue-crack growth », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 1, n° 4, p. 633-651, 1970.
- [200] A. Vasudevan et K. Sadananda, « Classification of environmentally assisted fatigue crack growth behavior », *Int. J. Fatigue*, vol. 31, n° 11, p. 1696-1708, 2009.
- [201] L. Paolinelli, G. Carr, N. Gubeljak, J. Predan, et M. Chapetti, « Fracture toughness analysis of a ductile steel by means of 3D surface displacements », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 98, p. 109-121, 2013.
- [202] L. Humbert, V. Valle, et M. Cottron, « Experimental determination and empirical representation of out-of-plane displacements in a cracked elastic plate loaded in mode I », *Int. J. Solids Struct.*, vol. 37, n° 39, p. 5493-5504, 2000.
- [203] Y. Barranger, P. Doumalin, J.-C. Dupre, A. Germaneau, S. Hedan, et V. Valle, « Evaluation of three-dimensional and two-dimensional full displacement fields of a single edge notch fracture mechanics specimen, in light of experimental data using X-ray tomography », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 76, n° 15, p. 2371-2383, 2009.
- [204] B. Bouchet et J. De Fouquet, « Relation entre l'étendue de la zone plastique et la propagation des fissures de fatigue: influence de l'environnement », présenté à 4th Int. Conf. on the Strength of Metals and Alloys, Nancy, 1976, p. 485-489.
- [205] Y. Murakami, T. Kanezaki, et Y. Mine, « Hydrogen effect against hydrogen embrittlement », *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 41, n° 10, p. 2548-2562, 2010.
- [206] I. Scheider et W. Brocks, « Simulation of cup-cone fracture using the cohesive model », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 70, n° 14, p. 1943-1961, 2003.
- [207] I. Scheider, « Derivation of separation laws for cohesive models in the course of ductile fracture », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 76, n° 10, p. 1450-1459, 2009.

- [208] J. Chaboche, F. Feyel, et Y. Monerie, « Interface debonding models: a viscous regularization with a limited rate dependency », *Int. J. Solids Struct.*, vol. 38, n° 18, p. 3127-3160, 2001.
- [209] G. Duvaut et J. L. Lions, *Inequalities in mechanics and physics*. Springer, 1976.
- [210] D. Sasaki, M. Koyama, K. Higashida, K. Tsuzaki, et H. Noguchi, « Effects of hydrogen-altered yielding and work hardening on plastic-zone evolution: A finite-element analysis », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 40, n° 31, p. 9825-9837, 2015.
- [211] L. Anand, « A thermo-mechanically-coupled theory accounting for hydrogen diffusion and large elastic–viscoplastic deformations of metals », *Int. J. Solids Struct.*, vol. 48, n° 6, p. 962-971, 2011.
- [212] C. V. Di Leo et L. Anand, « Hydrogen in metals: A coupled theory for species diffusion and large elastic–plastic deformations », *Int. J. Plast.*, vol. 43, p. 42-69, 2013.
- [213] A. T. Yokobori, T. Nemoto, K. Satoh, et T. Yamada, « Numerical analysis on hydrogen diffusion and concentration in solid with emission around the crack tip », *Eng. Fract. Mech.*, vol. 55, n° 1, p. 47-60, 1996.
- [214] A. T. Yokobori, T. Ohmi, T. Murakawa, T. Nemoto, T. Uesugi, et R. Sugiura, « The application of the analysis of potential driven particle diffusion to the strength of materials », *Strength Fract. Complex.*, vol. 7, n° 2, p. 215-233, 2011.
- [215] A. T. Yokobori et T. Ohmi, « The significance of  $\alpha$  multiplication method for numerical analysis of potential induced particle diffusion », *Strength Fract. Complex.*, vol. 8, n° 2, p. 117-124, 2014.
- [216] A. Brass, J. Chene, et A. Boutry-Forveille, « Measurements of deuterium and tritium concentration enhancement at the crack tip of high strength steels », *Corros. Sci.*, vol. 38, n° 4, p. 569-585, 1996.
- [217] A. Barnoush et H. Vehoff, « In situ electrochemical nanoindentation: A technique for local examination of hydrogen embrittlement », *Corros. Sci.*, vol. 50, n° 1, p. 259-267, 2008.





## Résumé

L'objectif principal de ce travail est la compréhension des mécanismes qui gouvernent la fissuration assistée par l'hydrogène dans les métaux, en s'appuyant sur l'analyse expérimentale de la propagation des fissures en atmosphère hydrogénante et de l'interaction entre hydrogène et défauts cristallins, et sur le développement d'un modèle de zone cohésive influencé par l'hydrogène.

Des essais de propagation de fissure de fatigue ont été réalisés sous haute pression d'hydrogène gazeux sur le fer de pureté commerciale Armco. Les résultats montrent une forte influence de la pression, de la fréquence et de la valeur de  $\Delta K$  sur la modification des modes de rupture, et, par conséquent, sur les vitesses de propagation. Afin d'identifier les paramètres physiques pertinents qui gouvernent les modes de rupture, une étude sur l'interaction entre hydrogène et défauts cristallins développés lors d'une sollicitation cyclique a été réalisée. Nous avons observé une augmentation de l'absorption totale d'hydrogène avec la déformation plastique cumulée, qui peut être attribuée à l'augmentation du piégeage de l'hydrogène par les dislocations générées au cours de la déformation. Ces données seront ensuite introduites dans un modèle pour reproduire la modification de la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure, et son effet sur la plasticité.

Par ailleurs, des mesures de la déformation plastique hors plan en pointe de fissure en présence d'hydrogène ont permis de proposer une amélioration d'un modèle de zone cohésive en introduisant un effet de l'hydrogène sur le comportement plastique des éléments de volume. De plus, l'étude des composantes de la loi de diffusion de Krom a montré l'importance du gradient de contrainte hydrostatique sur la diffusion et l'accumulation de l'hydrogène en pointe de fissure. Le modèle prédit une forte dépendance de la propagation de fissures vis-à-vis de la diffusion de l'hydrogène en pointe de fissure, et est capable de simuler la propagation de fissure sous chargement statique, validant ainsi la superposition d'une composante de fissuration cyclique et d'une contribution statique (due à la présence d'hydrogène), et expliquant la transition des vitesses de propagation observée expérimentalement.

**Mots clés :** Fatigue, Fissuration assistée par l'hydrogène, Mécanismes d'endommagement, Modèle de zone cohésive

## Abstract

The main purpose of this work is to understand the mechanisms that govern hydrogen assisted cracking in metals, based on the experimental analysis of crack propagation data under gaseous hydrogen and the interaction between hydrogen and lattice defects on the one hand, and on the development of a cohesive zone model influenced by hydrogen on the other hand.

Fatigue crack propagation tests were performed under high pressure of gaseous hydrogen on the Armco iron. The results show a strong influence of the pressure, the frequency and the  $\Delta K$  value, on the modification of the failure modes and on the fatigue crack growth rates. In order to identify the physical parameters that govern the changing of the failure modes, a study on the interaction between hydrogen and the crystallographic defects developed during a cyclic loading was performed. We observe an increase in the total absorption of hydrogen with the cumulated plastic deformation, which can be attributed to the increase in the hydrogen trapping by the dislocations generated during the cyclic deformation. These data have to be introduced into a numerical model to reproduce the modification of the hydrogen diffusion at the crack tip, and its effect on plasticity.

Moreover, measurements of the out-of-plane plastic deformation at the crack tip in presence of hydrogen have been conducted to improve the cohesive zone model by introducing an effect of hydrogen on the plastic behavior of the volume elements. In addition, the study of Krom diffusion law components has shown the importance of the hydrostatic stress gradient on the diffusion and accumulation of hydrogen at the crack tip. The model predicts a strong dependence of the crack propagation with respect to the hydrogen diffusion at the crack tip, and it is able to simulate the propagation under static load, thus validating the cyclic cracking and static cracking superposition, and explaining the transient regime in fatigue crack growth rates experimentally observed.

**Keywords:** Fatigue, Hydrogen Assisted Cracking, Damage mechanisms, Cohesive Zone Model