



**HAL**  
open science

# Analyse expérimentale et numérique de l'essai de disque de rupture : Cas de l'acier AISI 4135 testé sous hydrogène gazeux

Kevin Ardon

## ► To cite this version:

Kevin Ardon. Analyse expérimentale et numérique de l'essai de disque de rupture : Cas de l'acier AISI 4135 testé sous hydrogène gazeux. Matériaux et structures en mécanique [physics.class-ph]. Université Sorbonne Paris Cité, 2015. Français. NNT : 2015USPCD062 . tel-02918094

**HAL Id: tel-02918094**

**<https://theses.hal.science/tel-02918094v1>**

Submitted on 20 Aug 2020

**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.

Université PARIS 13  
Institut Galilée

**Mémoire de thèse**

Présenté pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS 13  
SORBONNE PARIS CITÉ**

*Discipline : Mécanique des Matériaux*

**Kevin ARDON**

**Analyse expérimentale et numérique de l'essai de disque de  
rupture : Cas de l'acier AISI 4135 testé sous hydrogène gazeux**

*Soutenue le 23/06/2015*

MEMBRES DU JURY

M. Gilbert HÉNAFF, Professeur ISAE-ENSMA	Rapporteur
M. Pierre-Yves MANACH, Professeur Université de Bretagne-Sud	Rapporteur
Mme Brigitte BACROIX, Directrice de Recherche CNRS	Examineur
M. Patrice JOUINOT, Maître de Conférences Supméca	Examineur
M. Hervé BARTHÉLÉMY, Air Liquide	Examineur
M. Jader FURTADO, Air Liquide	Examineur
Mme Monique GASPÉRINI, Professeure Université Paris 13	Directrice de thèse
M. Yann CHARLES, Maître de Conférences Université Paris 13	Co-encadrant de thèse

Thèse préparée à:  
Université Paris 13, Sorbonne Paris Cité,  
Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux, CNRS, (UPR 3407)  
F-93430, Villetaneuse, France









Université PARIS 13  
Institut Galilée

**Mémoire de thèse**

Présenté pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS 13  
SORBONNE PARIS CITÉ**

*Discipline : Mécanique des Matériaux*

**Kevin ARDON**

**Analyse expérimentale et numérique de l'essai de disque de  
rupture : Cas de l'acier AISI 4135 testé sous hydrogène gazeux**

*Soutenue le 23/06/2015*

MEMBRES DU JURY

M. Gilbert HÉNAFF, Professeur ISAE-ENSMA	Rapporteur
M. Pierre-Yves MANACH, Professeur Université de Bretagne-Sud	Rapporteur
Mme Brigitte BACROIX, Directrice de Recherche CNRS	Examineur
M. Patrice JOUINOT, Maître de Conférences Supméca	Examineur
M. Hervé BARTHÉLÉMY, Air Liquide	Examineur
M. Jader FURTADO, Air Liquide	Examineur
Mme Monique GASPÉRINI, Professeure Université Paris 13	Directrice de thèse
M. Yann CHARLES, Maître de Conférences Université Paris 13	Co-encadrant de thèse

Thèse préparée à:  
Université Paris 13, Sorbonne Paris Cité,  
Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux, CNRS, (UPR 3407)  
F-93430, Villetaneuse, France



### Remerciements

*Tout d'abord mes remerciements vont aux membres du jury et notamment à Madame Brigitte Bacroix qui m'a fait l'honneur de le présider. Je tiens également à remercier messieurs Gilbert Hénaff et Pierre-Yves Manach qui ont accepté d'analyser mes travaux et d'en être rapporteurs. Je tiens également à remercier Monsieur Patrice Jouinot pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.*

*Je remercie profondément Madame Monique Gaspérini et Monsieur Yann Charles respectivement directrice et encadrant de mes travaux de thèse, pour leur précieux conseils et la confiance qu'ils m'ont porté au cours de ces années de thèse.*

*Je remercie également mes collègues d'Air Liquide, mesdames Béatrice Fuster Déborah Houssin et Maud Barbalat et messieurs Jader Furtado, Olivier Bardoux, Damiens Sallais, Patrice Levée, Hervé Barthélémy et Frédéric Foy. D'une manière plus globale je tiens à remercier l'ensemble du personnel Air Liquide avec lequel j'ai été amené à travailler que ce soit au Centre de Recherche Paris Saclay ou au Centre Technique d'Expertise.*

*J'adresse également des remerciements particuliers aux membres du Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux de l'Université Paris 13 pour leur accueil et leur bonne humeur. Au risque d'en oublier je préfère effectuer un remerciement global à tout le personnel.*

*Je tiens également à remercier l'ensemble des doctorants que j'ai été amené à côtoyer au cours de mes années de thèse, qu'ils aient ou non déjà soutenu : Romain, Nadim, Daniel, Walid, Tarik, Benoît, Pauline, Amine, Judith, Thiago, Stéphane, Bermame, Karim, Sonia, Hung... Merci pour toutes ces soirées, ce fut un réel plaisir d'être à vos côtés. J'en oublie sûrement mais je vous remercie tous. Je tiens également à profondément remercier mes chères collègues de bureau : Najoua, Noémie et Manel ayant déjà soutenues ainsi que Sabrina, bon courage à toi pour la fin de thèse.*

*Je tiens à remercier dans l'ensemble, toutes les personnes que j'ai pu rencontrer au cours de toutes mes années à l'Université Paris 13, ainsi que les membres de l'association d'escalade « La grotte » pour toutes ces folles séances de grimpe : Kamel, Manon, Claire, Ariane, Ievgen et tous les autres. Mention spéciale à Monsieur Bruno Telleschi et Madame Isabelle Bataille pour leur soutien au cours de ces années.*

*Enfin je tiens à vivement remercier ma famille pour leur soutien indéfectible : Jennifer, Léa mes adorables sœurs ainsi que mes parents Patrick et Leïla. Je remercie aussi mes proches avec en tête mes « ponchonnais » : Quentin, Dimitri, Guillaume, Ludovic et Axel. Et de façon plus globale je remercie infiniment toutes les personnes qui m'ont soutenu pendant la rédaction de ce mémoire. Merci pour tout !*



# Table des Matières

<b>Notations .....</b>	<b>13</b>
<b>Introduction générale .....</b>	<b>17</b>
<b>1. Contexte industriel .....</b>	<b>17</b>
<b>2. Présentation de l'étude .....</b>	<b>18</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>19</b>
<b>I. Bibliographie .....</b>	<b>21</b>
<b>I.1. Fragilisation par l'hydrogène.....</b>	<b>21</b>
I.1.a. Mécanismes d'absorption .....	21
I.1.b. Diffusion et piégeage de l'hydrogène dans un métal .....	22
I.1.c. Influence de l'hydrogène sur le comportement du matériau.....	26
<b>I.2. Caractérisation expérimentale de la FPH .....</b>	<b>32</b>
I.2.a. Méthodes de chargement et essais associés.....	32
I.2.b. Essai de disque.....	36
I.2.c. Comportement de l'acier AISI 4135 .....	41
<b>I.3. Modélisation des interactions hydrogène-matériau.....</b>	<b>44</b>
I.3.a. Modélisation de la diffusion .....	44
I.3.b. Prise en compte du piégeage de l'hydrogène .....	47
I.3.c. Modélisation de la rupture .....	50
<b>I.4. Simulations numériques par éléments finis .....</b>	<b>52</b>
I.4.a. Simulations numériques des interactions hydrogène-matériau .....	52
I.4.b. Simulations numériques de l'essai de disque.....	60
<b>I.5. Conclusions .....</b>	<b>64</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>65</b>
<b>II. Caractérisation du matériau de l'étude .....</b>	<b>73</b>
<b>II.1. Spécificités de la bouteille de gaz dédiée à l'étude.....</b>	<b>73</b>
II.1.a. Données fournies par le constructeur .....	73
II.1.b. Prélèvement des échantillons .....	74
II.1.c. Numérotation des échantillons .....	75
<b>II.2. Caractérisation mécanique.....</b>	<b>76</b>
II.2.a. Profils de microdureté dans l'épaisseur de la bouteille .....	76
II.2.b. Essais de traction .....	78
<b>II.3. Caractérisation microstructurale .....</b>	<b>82</b>
II.3.a. Dispositifs de caractérisation microstructurale .....	82
II.3.b. Protocole de préparation des échantillons .....	85
II.3.c. Texture cristallographique globale du matériau.....	85
II.3.d. Diffractogramme $\theta$ - $2\theta$ .....	87
II.3.e. Caractérisation microstructurale.....	87
<b>II.4. Conclusions .....</b>	<b>93</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>94</b>

<b>III. Essais de disque .....</b>	<b>95</b>
<b>III.1. Protocole d'essai .....</b>	<b>95</b>
III.1.a. Configuration du banc d'essai .....	95
III.1.b. Essais de disques réalisés .....	97
III.1.c. Contrôle de la rugosité des disques .....	99
III.1.d. Mesure de la dureté des disques .....	102
<b>III.2. Résultats des essais de disque .....</b>	<b>105</b>
III.2.a. Pressions de rupture et indice de fragilisation .....	105
III.2.b. Courbes flèche-pression .....	116
III.2.c. Mesures de profils .....	121
<b>III.3 Analyses MEB-EBSD de l'endommagement.....</b>	<b>124</b>
III.3.a. Mécanismes de fissuration sous hélium .....	124
III.3.b. Mécanismes de fissuration sous hydrogène .....	127
III.3.c. Comparaison de l'évolution de l'endommagement sous He et H <sub>2</sub> .....	133
<b>III.4 Conclusions .....</b>	<b>140</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>141</b>
<b>IV. Modélisation par éléments finis de l'essai de disque.....</b>	<b>143</b>
<b>IV.1. Présentation du modèle .....</b>	<b>144</b>
IV.1.a. Hypothèses de calcul .....	144
IV.1.b. Paramètres matériaux utilisés.....	145
IV.1.c. Comparaison simulations-mesures expérimentales.....	147
<b>IV.2. Analyse des champs mécaniques simulés .....</b>	<b>152</b>
IV.2.a. Champs mécaniques dans l'ensemble du disque .....	153
IV.2.b. Influence de l'épaisseur .....	156
IV.2.c. Influence du rayon de courbure de l'outil de maintien .....	160
IV.2.d. Influence des paramètres d'érouissage.....	164
<b>IV.3. Modélisation de l'endommagement ductile .....</b>	<b>167</b>
IV.3.a. Description du modèle .....	167
IV.3.b. Modélisation de l'endommagement ductile .....	168
IV.3.c. Extrapolation aux très fortes épaisseurs .....	169
<b>IV.4. Conclusions .....</b>	<b>171</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>172</b>
<b>V. Modélisation des interactions hydrogènes-matériau .....</b>	<b>173</b>
<b>V.1. Approche de la rupture par zones cohésives dépendant de l'hydrogène.....</b>	<b>173</b>
V.1.a. Identification des paramètres .....	174
V.1.b. Calcul des pressions de rupture .....	174
V.1.c. Discussion .....	177
<b>V.2. Simulation numérique du couplage diffusion-piégeage-plasticité.....</b>	<b>177</b>
V.2.a. Modèle utilisé .....	177
V.2.b. Evolution du piégeage avec la déformation plastique .....	178
V.2.c. Stratégie de calcul.....	179
<b>V.3. Application à la simulation 2D axisymétrique de l'essai de disque.....</b>	<b>180</b>
V.3.a. Distribution de l'hydrogène diffusif.....	180

V.3.b. Distribution d'hydrogène piégé et total dans le disque .....	182
<b>V.4. Application à des agrégats polycristallins virtuels 3D .....</b>	<b>183</b>
V.4.a. Comportement mécanique du monocristal .....	183
V.4.b. Mise en place du submodelling.....	185
V.4.c. Distribution des champs mécaniques dans l'agrégat polycristallin .....	187
V.4.d. Distribution d'hydrogène dans l'agrégat polycristallin .....	189
V.4.e. Définition d'un indice de fragilisation local .....	192
<b>V.5. Conclusions .....</b>	<b>194</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>194</b>
<b><i>Conclusion et perspectives .....</i></b>	<b><i>197</i></b>
<b><i>Table des illustrations.....</i></b>	<b><i>201</i></b>
<b>1. Figures .....</b>	<b>201</b>
<b>2. Tableaux .....</b>	<b>210</b>





## Notations

### Lettres latines :

a	Paramètre matériau	
$\dot{a}$	Vitesse de déformation de référence	(s <sup>-1</sup> )
A	Paramètre d'écrouissage	(Pa)
A <sub>0</sub>	Constante de normalisation	
A <sub>n</sub>	Probabilité de nucléation d'un pore	
a <sub>Habs</sub>	Activité de l'hydrogène	
Al	Allongement à rupture	(%)
b	Paramètre matériau	
C	Coefficient d'écrouissage	
C <sub>0</sub>	Concentration d'hydrogène en surface du matériau	(m <sup>3</sup> at H .m <sup>-3</sup> at m)
C <sub>11</sub>	Constante élastique	(Pa)
C <sub>12</sub>	Constante élastique	(Pa)
C <sub>44</sub>	Constante élastique	(Pa)
C <sub>H</sub>	Concentration d'hydrogène absorbé	(m <sup>3</sup> at H .m <sup>-3</sup> at m)
C <sub>L</sub>	Concentration réticulaire d'hydrogène	(m <sup>3</sup> at H .m <sup>-3</sup> at m)
C <sub>L0</sub>	Concentration initiale en sites interstitiels à 10 <sup>5</sup> Pa et 300 K	(m <sup>3</sup> at H .m <sup>-3</sup> at m)
C <sub>T</sub>	Concentration d'hydrogène piégé	(m <sup>3</sup> at H .m <sup>-3</sup> at m)
C <sub>TOT</sub>	Concentration totale d'hydrogène dans le matériau	(m <sup>3</sup> at H .m <sup>-3</sup> at m)
d	Diamètre	(m)
D <sub>0</sub>	Constante d'intégration	
D <sub>eff</sub>	Coefficient de diffusion effectif	(m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )
D <sub>L</sub>	Coefficient de diffusion réticulaire de l'hydrogène	(m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )
D <sub>H</sub>	Coefficient de diffusion de l'hydrogène	(m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )
e	Epaisseur	(m)
E	Module d'Young	(Pa)
E <sub>D</sub>	Energie d'activation du processus de diffusion	(J.mol <sup>-1</sup> )
f	Fraction volumique du matériau	
f <sub>0</sub>	Porosité initiale	
g	Surface de charge	(Pa)
g <sup>s</sup>	Cission critique du système de glissement s	(Pa)
h <sub>0</sub>	Module d'écrouissage initial	(Pa)
h <sub>ss</sub>	Auto-écrouissage	
h <sub>ss',s#s</sub>	Écrouissage latent	
l	Indice de fragilisation	
l <sub>rupt</sub>	Indice de fragilisation local	
K	Constante de dissociation et de transfert à l'interface gaz/solide	
K <sub>T</sub>	Constante d'équilibre de piégeage	
l	Longueur	(m)
J	Flux de diffusion	(m <sup>3</sup> .m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> )

$m^s$	Direction de glissement du système s	
$M_L$	Mobilité de l'hydrogène dans le réseau cristallin	( $m.s^{-1}$ )
n	Coefficient d'écrouissage	
$n^s$	Normale au système glissement s	
$N_L$	Nombre de sites interstitiels disponibles pour la diffusion en réseau	( $m^{-3}$ )
$N_T$	Nombre de sites de piégeage existant	( $m^{-3}$ )
P	Pression	(Pa)
$P_i$	Pression d'arrêt i	(Pa)
$P_{H_2}$	Pression d'hydrogène	(Pa)
$P_{He}$	Pression d'hélium	(Pa)
$P_{rupt}$	Pression de rupture	(Pa)
q	Paramètre d'écrouissage	
$q_1$	Paramètre matériau	
$q_2$	Paramètre matériau	
$q_3$	Paramètre matériau	
R	Constante molaire des gaz parfaits	( $J.K^{-1}.mol^{-1}$ )
$R_a$	Rugosité moyenne arithmétique	(m)
$R_e$	Limite d'élasticité	(Pa)
$R_{e,0,2\%}$	Limite d'élasticité à 0,2 %	(Pa)
$R_c$	Rayon de courbure	(m)
$R_m$	Résistance à la traction	
$R_{sat}$	Paramètre d'écrouissage	(Pa)
s	Système de glissement	
S	Solubilité de l'hydrogène	(at H . $m^{-3}$ )
$S_0$	Constante de solubilité de l'hydrogène	
$s_n$	Paramètre statistique de nucléation de pore	
t	Temps	(s)
T	Température	(K)
$T_0$	Contrainte cohésive	(Pa)
$T_{0,hyd}$	Contrainte cohésive sous hydrogène	(Pa)
$V_H$	Volume molaire partiel de l'hydrogène	( $m^3.mol^{-1}$ )
$v_p$	Vitesse de pressurisation	( $Pa.s^{-1}$ )

#### Lettres grecques :

$\alpha$	Paramètre matériau	( $at^{-1}$ )
$\gamma$	Glissement cumulé	
$\dot{\gamma}^s$	Vitesse de glissement sur le système s	( $s^{-1}$ )
$\Delta$	Opérateur laplacien	
$\Delta g_b^0$	Différence d'énergie libre de Gibbs entre la surface et le volume	( $J.mol^{-1}$ )
$\Delta g$	Paramètre phénoménologique	(Pa)
$\Delta H_s$	Enthalpie de dissolution	( $J.mol^{-1}$ )

$\Delta W_L$	Energie d'activation pour la diffusion entre deux sites interstitiels	(J.mol <sup>-1</sup> )
$\Delta W_B$	Energie de piégeage	(J.mol <sup>-1</sup> )
$\Delta W'$	Col énergétique précédent le piégeage	(J)
$\Delta \epsilon_p$	Incrément de déformation plastique	
$\Delta f$	Variation de porosité	
$\Delta f_n$	Création de nouvelles porosités	
$\epsilon_p$	Déformation plastique cumulée	
$\epsilon_n$	Paramètre statistique de nucléation de pore	
$\theta$	Taux de recouvrement	
$\theta_L$	Taux d'occupation réticulaire de l'hydrogène	
$\theta_T$	Taux d'occupation des pièges de l'hydrogène	
$\kappa_p$	Paramètre matériau	(Pa <sup>-1</sup> )
$\mu_0$	Potentiel de référence de l'hydrogène	(J.mol <sup>-1</sup> )
$\mu_H$	Potentiel chimique de l'hydrogène	(J.mol <sup>-1</sup> )
$\mu_H^0$	Potentiel chimique de l'hydrogène en l'absence de contrainte	(J.mol <sup>-1</sup> )
$\nu$	Coefficient de Poisson	
$\nabla$	Opérateur Nabla	
$\sigma_{max}^0$	Contrainte seuil	(Pa)
$\sigma_{eq}$	Contrainte équivalente	(Pa)
$\sigma_H$	Contrainte hydrostatique	(Pa)
$\sigma_Y$	Limite d'élasticité	(Pa)
$\sigma_{max}$	Contrainte maximale principale	(Pa)
$\sigma_{min}$	Contrainte minimale principale	(Pa)
$\sigma_{moy}$	Contrainte moyenne principale	(Pa)
$\sigma_{rupt}$	Contrainte critique d'initiation de rupture	(Pa)
$\tau_0$	Module de cisaillement initial	(Pa)
$\tau_s$	Module de cisaillement saturant	(Pa)



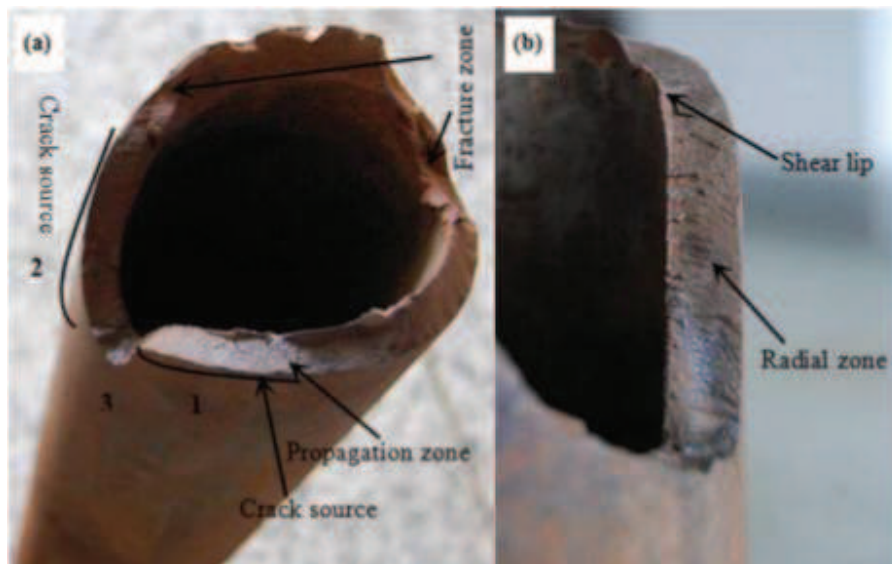
# Introduction générale

## 1. Contexte industriel

Les enjeux environnementaux poussent les industriels à chercher des sources d'énergies non polluantes. L'utilisation de l'hydrogène en tant que vecteur énergétique via les piles à combustibles est l'une des solutions envisagées à moyen terme pour la production d'énergie. L'hydrogène est l'élément le plus abondant de l'univers, possédant un haut pouvoir calorifique et sa combustion est propre car ne produisant que de l'eau [1, 2].

Cependant, les problématiques liées à l'utilisation de l'hydrogène pour pallier aux énergies fossiles sont sa production (majoritairement assurée par vaporeformage de combustibles fossiles), sa conversion, son stockage et enfin son transport [2], le stockage sous forme gazeuse étant au centre de la présente étude. L'hydrogène étant le plus petit élément, il possède une faible densité gazeuse ( $0,0899 \text{ kg/m}^3$  à  $273 \text{ K}$  et  $1013,25 \cdot 10^5 \text{ Pa}$  contre  $0,6512 \text{ kg/m}^3$  pour le gaz naturel) impliquant l'utilisation de fortes pressions pour son stockage en grande quantité [3].

Air Liquide maîtrise l'ensemble de la chaîne de l'hydrogène (production, stockage, distribution, applications), avec une préoccupation essentielle pour la sécurité qui nécessite l'application de normes et réglementations strictes. En vue de développer la filière hydrogène énergie, de nouveaux défis d'ordre technologiques interviennent. L'un des freins majeurs au développement de cette filière est lié à la fragilisation par l'hydrogène des matériaux de transport et de stockage pouvant mener à des ruptures précoces des installations (Figure 1.1).



**Figure 1.1.** Rupture suite à une fragilisation par l'hydrogène d'une canalisation dans un oléoduc (a) ; (b) est un agrandissement de la zone numérotée 1 dans (a) [4].

Actuellement, Air Liquide utilise un essai appelé « essai de disque » pour sélectionner les matériaux utilisables en milieu hydrogène gazeux pour des pressions inférieures à 30 MPa. Cet essai est normalisé selon la norme ISO 11114-4 : Bouteilles à gaz transportables – Compatibilité des matériaux des bouteilles et des robinets avec les contenus gazeux [5].

Cependant, le développement de la filière hydrogène énergie implique la nécessité d'utiliser des pressions allant jusqu'à 90 MPa pour augmenter les capacités de stockage et optimiser la logistique d'approvisionnement. Afin de répondre à cette demande et d'assurer la sécurité des structures exposées à l'hydrogène il est nécessaire d'étudier pour des pressions élevées les mécanismes de fragilisation par l'hydrogène des matériaux utilisés pour la fabrication des bouteilles destinés au stockage de l'hydrogène.

En effet l'hydrogène est connu pour fragiliser les métaux, en particulier les aciers, et donc diminuer leurs caractéristiques mécaniques [6]. Cependant les mécanismes d'interaction hydrogène-matériau sont complexes et dépendent de nombreux facteurs (composition, concentration, état du matériau, sollicitations appliquées,...). La compréhension, la maîtrise et surtout la prévention de ces phénomènes, nécessitant des investigations poussées, est devenue un enjeu majeur [7] pour la sécurité et la fiabilité des structures, stimulant à la fois pour le monde académique et industriel.

Dans ce contexte, les travaux présentés ici portent sur l'analyse numérique et expérimentale de l'essai de disque et de son application au cas de l'acier AISI 4135 testé sous hydrogène gazeux. L'objectif principal pour le partenaire industriel est d'apprécier la validité de l'essai de disque pour la sélection des matériaux compatibles avec l'hydrogène à des pressions de stockage supérieures à 30 MPa (typiquement 60 MPa), ce qui nécessite une analyse approfondie de l'essai, à la fois sur le plan expérimental et sur le plan numérique en vue d'une approche prédictive. Pour cela, différentes campagnes d'essais disque ont été réalisées sur site industriel pour identifier les paramètres expérimentaux influents et analyser en laboratoire les mécanismes de fissuration à l'échelle de la microstructure. En parallèle la simulation numérique par éléments finis de l'essai de disque a été développée dans un code de calcul commercial (Abaqus ©), en utilisant et adaptant des outils numériques spécifiques développés au LSPM [8, 9] pour la prise en compte, à l'échelle macroscopique et/ou à l'échelle de la microstructure, de couplages entre les champs mécaniques et la diffusion/piégeage de l'hydrogène au cours de l'essai. Elles permettent d'analyser les champs mécaniques et de concentration d'hydrogène et visent à proposer des critères d'initiation de la fissuration assistée par l'hydrogène en vue de prévoir les pressions de rupture au cours de l'essai.

## **2. Présentation de l'étude**

Ce manuscrit s'organise en 5 chapitres. Le premier chapitre porte sur une étude bibliographique de la Fragilisation Par l'Hydrogène (FPH). Les mécanismes de pénétration et de diffusion de l'hydrogène dans les métaux sont présentés. Ensuite les différentes techniques de caractérisation expérimentale de la fragilisation sont décrites. Les interactions entre l'hydrogène et le matériau et leur modélisation sont abordées, ainsi que les simulations numériques par éléments finis liées à ce contexte.

Le deuxième chapitre porte sur la caractérisation microstructurale et mécanique du matériau provenant de la bouteille de gaz dédiée à l'étude. La caractérisation microstructurale est réalisée par analyses MEB (Microscopie à Balayage Electronique), EBSD (Electron BackScattered Diffraction) et diffraction des rayons X. Des analyses de rugosité, de dureté et des essais de traction ont été utilisés pour la caractérisation mécanique.

Le troisième chapitre est consacré aux essais de disques réalisés, concernant des essais à rupture avec étude de l'influence de différents paramètres expérimentaux sur les pressions de rupture, et des essais interrompus avant la rupture. Des investigations sont effectuées par MEB-EBSD pour analyser les évolutions microstructurales et la fissuration.

Le quatrième chapitre est focalisé sur la simulation par éléments finis de l'essai de disque dans le cadre du comportement élastoplastique isotrope. Les simulations en 2D axisymétrique sont comparées à des résultats expérimentaux. L'évolution des champs mécaniques au cours d'un essai de disque est étudiée et l'influence de plusieurs paramètres tels que les paramètres matériau, l'épaisseur des disques ou la géométrie de la cellule d'essai est discutée. Une simulation 3D d'un secteur angulaire du disque est également réalisée pour modéliser l'endommagement ductile lors des essais sous He.

Dans le cinquième chapitre la prise en compte des interactions hydrogène-matériau dans les simulations par éléments finis est abordée, d'abord à l'aide d'un modèle cohésif [8] pour décrire les pression de rupture sous hydrogène, puis en adaptant au cas de l'essai de disque les outils numériques récemment développés au LSPM [9] prenant en compte le couplage entre la diffusion, le piégeage de l'hydrogène et la déformation plastique. Les calculs sont effectués à l'échelle macroscopique, puis dans le cadre de l'élastoplasticité cristalline à l'échelle d'un polycristal virtuel en effectuant un submodeling dans la zone d'intérêt pour la rupture, en vue de définir des critères locaux de fragilisation.

Les principales conclusions et perspectives issues des travaux de thèse sont exposées dans la dernière partie.

## ***Bibliographie***

- [1] T.J. Carter, L.A. Cornish. *Hydrogen in metals*. Engineering Failure Analysis, 2001. **8**: p.113-121.
- [2] I. Moro. *Fragilisation par l'hydrogène gazeux d'un acier ferrito-perlitique de grade API X80*. Thèse de doctorat. Université Toulouse 3, 2009.
- [3] P. Mazabraud. *Le stockage sous pression*. Les clés du CEA, 2005. **50-51**: p.58-59.
- [4] H. Yan, Z. Xuehu, B. Zhenquan, Y. Chengxian. *Failure Analysis on Fracture of a S135 Drill Pipe*. Procedia Materials Science, 2014. **3**: p.447 – 453.



[5] ISO 11114-4, 2005. *Transportable gas cylinders – compatibility of cylinder and valve materials with gas contents – Part 4: Test methods for selecting metallic materials resistant to hydrogen embrittlement.*

[6] V.I. Tkachov. *Effect of hydrogen on the properties of structural steels.* Materials Science, 2005. **41** (4): p.547-550.

[7] E. David. *An overview of advanced materials for hydrogen storage.* Journal of Materials Processing Technology, 2005. **162-163**: p.169-177.

[8] Y. Charles, M. Gaspérini, J. Disashi, P. Jouinot. *Numerical modeling of the Disk Pressure Test up to failure under gaseous hydrogen.* Journal of Materials Processing Technology, 2012. **212** (8) : p.1761-1770.

[9] T.H. Nguyen. *Développement d'outils numériques pour la prise en compte du couplage hydrogène-plasticité dans un code éléments finis : application à l'essai de pliage en U.* Thèse de doctorat. Université Paris 13, 2014.

# I. Bibliographie

La Fragilisation Par l'Hydrogène (FPH) est un phénomène complexe pouvant se manifester de différentes façons en fonction du matériau, de l'environnement et des conditions de sollicitations. La première référence bibliographique remonte à 1875, ce phénomène causant des ruptures brutales des pièces dans l'industrie provoquant ainsi d'importantes conséquences humaines et économiques [1, 2].

Dans un premier temps un état de l'art de la FPH est dressé, les phénomènes d'absorption, de diffusion et de piégeage y sont décrits ainsi que les principaux mécanismes de fragilisation identifiés découlant des interactions entre l'hydrogène et les matériaux.

Ensuite la mise en évidence expérimentale de la FPH est abordée avec une description des différentes méthodes de chargement et des essais mécaniques mis en œuvre pour étudier la FPH en laboratoire. L'essai de disque, utilisé pour sélectionner les matériaux compatibles avec l'hydrogène gazeux, est alors décrit. Les propriétés de l'acier AISI 4135 utilisé pour la fabrication des bouteilles destinées au stockage de l'hydrogène gazeux à 30 MPa, ainsi que le protocole de fabrication des bouteilles sont ensuite présentés.

Enfin, la modélisation des interactions entre la déformation plastique, le champ de contrainte et la diffusion-piégeage de l'hydrogène est décrite. Puis quelques exemples de simulations par éléments finis des interactions hydrogène-matériau à différentes échelles et de l'essai de disque sont présentés.

## *I.1. Fragilisation par l'hydrogène*

### **I.1.a. Mécanismes d'absorption**

L'introduction de l'hydrogène dans un métal résulte de son exposition à un milieu hydrogéné, ce phénomène prenant place dans des environnements gazeux ou liquides. La mise en contact du métal avec des sources d'hydrogène peut conduire à différents types d'interaction entre le milieu et la surface du métal [2] : adsorption de molécules  $H_2$ , décharge de protons ou d'espèces chargées issues d'un électrolyte ou d'un plasma, décomposition d'espèces hydrogénées à la surface du métal.

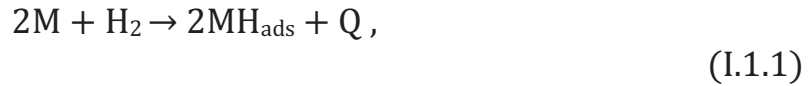
#### *i. Hydrogène issu d'un environnement gazeux*

En général, l'adsorption (phénomène au cours duquel des atomes de gaz ou de liquide se fixent en surface d'un solide) de l'hydrogène gazeux est décrite en trois étapes [3] :

- physisorption de la molécule de dihydrogène en surface du métal gouvernée par des liaisons de type Van Der Waals entre la molécule  $H_2$  et les atomes de surface ;
- dissociation de la molécule de dihydrogène ;

- chimisorption des atomes d'hydrogène en surface, avec mise en commun de l'électron de l'hydrogène avec le nuage électronique du métal.

L'adsorption de l'hydrogène peut être schématisée par l'équation suivante [2] :



où  $H_{ads}$  l'hydrogène adsorbé (retenu) à la surface du métal M et Q une quantité de chaleur dont le signe détermine le caractère exothermique ou endothermique de la réaction.

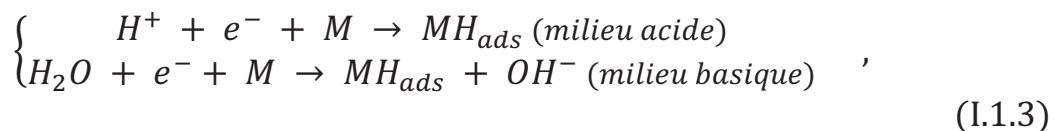
Après l'étape d'adsorption, les atomes se déplacent vers les sites interstitiels des premières couches atomiques du matériau, il s'agit alors d'hydrogène absorbé [3] :



où  $H_{abs}$  l'hydrogène absorbé.

## ii. Hydrogène issu d'un environnement liquide

Dans le cas d'une interaction d'un métal et d'un environnement liquide, comme c'est le cas dans les solutions aqueuses, la fragilisation a lieu suite à une corrosion électrochimique. Quand l'environnement est source de protons, la réaction cathodique conduit fréquemment à un dégagement d'hydrogène à la surface du métal suivant les réactions du type [2] :



où  $H_{ads}$  l'hydrogène adsorbé à la surface du métal.

Après que l'atome d'hydrogène ait été adsorbé, ce dernier peut soit se recombiner en  $H_2$  (dégagement d'hydrogène gazeux) soit diffuser dans le matériau et agir comme l'hydrogène introduit depuis un environnement gazeux.

### I.1.b. Diffusion et piégeage de l'hydrogène dans un métal

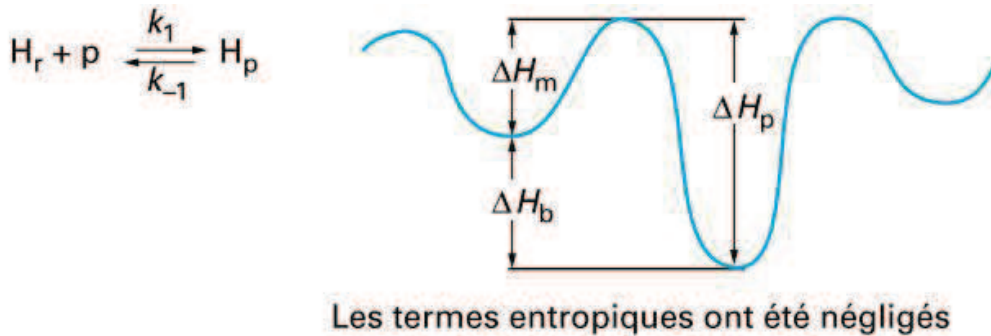
Après l'étape d'absorption, l'hydrogène diffuse et interagit avec le réseau cristallin du métal. La diffusion correspond au déplacement des atomes d'hydrogène dans le réseau, d'un site interstitiel à un autre, tandis que le piégeage résulte de l'interaction entre l'hydrogène et les défauts cristallins.

### *i. Diffusion de l'hydrogène*

L'association de sa petite taille (rayon atomique de l'hydrogène  $r_h \approx 0,53 \cdot 10^{-10}$  m) et de sa faible solubilité permet à l'hydrogène de diffuser dans le réseau cristallin du métal [2]. Il s'agit d'une diffusion réticulaire s'effectuant par des sauts entre chaque site interstitiel. Ces sauts nécessitent une énergie d'activation  $\Delta H_m$  (en  $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$ ), énergie pouvant être apportée par un champ de contrainte, un gradient de température ou un champ électrique [3].

### *ii. Piégeage de l'hydrogène dans le matériau*

Les pièges sont des défauts cristallins c'est-à-dire des joints de grains, des interfaces entre phases, des dislocations produites par la déformation plastique, des lacunes, etc. Un site de piégeage, d'un point de vue thermodynamique, correspond à un site où l'hydrogène pourra diminuer son potentiel chimique (Figure I.1.1). Il en résulte une énergie d'activation nécessaire au piégeage qui sera dépendante des conditions environnantes (température, pression, etc.).



$\Delta H_m$  : enthalpie de migration     $\Delta H_b$  : énergie de liaison hydrogène-piège  
 $\Delta H_p$  : énergie de dépiégeage

**Figure I.1.1.** Principe énergétique de piégeage de l'hydrogène avec  $H_r$  site de réseau et  $H_p$  site de piégeage [2].

Les pièges sont caractérisés par leur nature qui peut être réversible si leur énergie de piégeage est faible ou irréversible si leur énergie est forte. Un exemple de caractérisation de la nature des pièges en fonction de leur énergie piégeage pour des alliages Fe-Ti-C et Fe-Ti est donné au Tableau I.1.1 tel que rapporté par Pressouyre et Bernstein [4]. Un atome d'hydrogène peut s'échapper d'un piège d'énergie faible si on lui fournit l'énergie nécessaire, en augmentant par exemple la température. On distingue également les pièges saturables et insaturables en fonction de la quantité d'atomes d'hydrogène pouvant être associée piège. Ainsi une dislocation est un piège saturable et une fissure un piège insaturable [5].

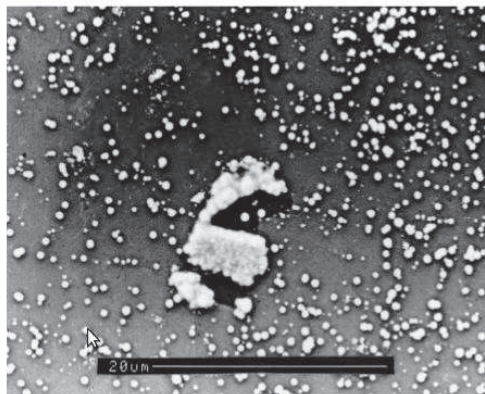
**Tableau I.1.1.** Classification des pièges présents dans des alliages de Fe-Ti et de Fe-Ti-C. E (piège-H) désigne l'énergie de piégeage [4].

Site de piégeage	Nature du piège à température ambiante	E (piège-H) (eV)
Carbure de titane (TiC)	Irréversible	0,98 / 0,8-0,98
Joint de grain	Réversible	0,27 / 0,55-0,61
Dislocation	Réversible	0,25
Atome de titane en substitution	Réversible	0,27
Site interstitiel	Site de diffusion très réversible	0,08

Les sites de piégeage peuvent être localisés par des techniques d'autoradiographie du tritium et de micro-impression dite « microprint » associées à de l'imagerie MEB (Microscopie Electronique à Balayage) ou MET (Microscopie Electronique en Transmission).

La méthode d'autoradiographie au tritium est basée sur l'analyse de la distribution de monocristaux d'argent formés par l'émulsion nucléaire en surface de l'échantillon par les particules  $\beta^-$  émises par le tritium durant sa décomposition [3, 6-9].

Cette méthode a permis de mettre en évidence le piégeage préférentiel de l'hydrogène sur des inclusions de sulfure de manganèse (MnS) dans un acier Cr-Mo [7] : la Figure I.1.2 montre la répartition de l'hydrogène après chargement cathodique, l'hydrogène étant majoritairement concentré sur l'inclusion de MnS comme le montre la densité des particules d'argent sur l'inclusion.



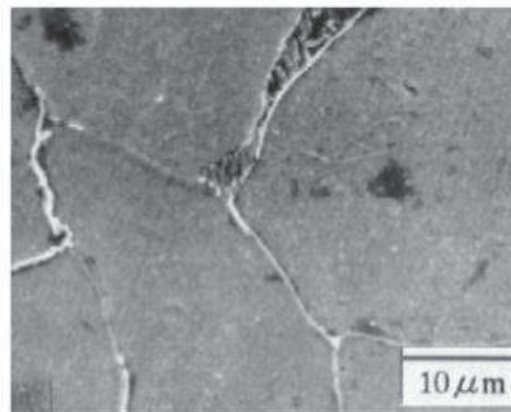
**Figure I.1.2.** Autoradiographie au tritium montrant le piégeage préférentiel de l'hydrogène sur l'inclusion de MnS après chargement en hydrogène par voie cathodique [7].

La technique d'autoradiographie au tritium a aussi permis de mettre en évidence le piégeage de l'hydrogène en tête de fissure sur des monocristaux déformés à 10% d'un superalliage de base nickel [8] comme l'illustre la Figure I.1.3.



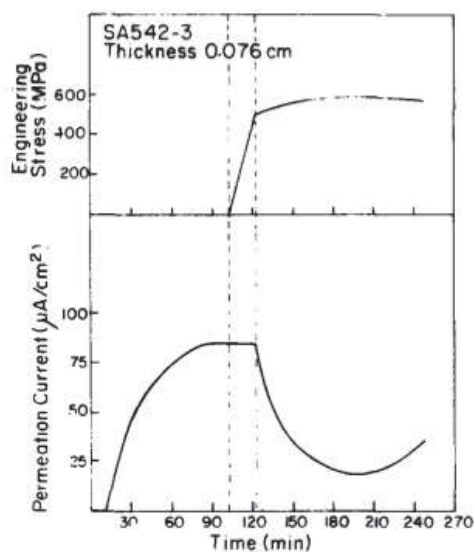
**Figure I.1.3.** Distribution de tritium en tête de fissure sur des monocristaux déformés d'un superalliage à base nickel [8].

La technique de micro-impression consiste à déposer une émulsion nucléaire de bromure d'argent puis à utiliser la capacité de l'hydrogène à réduire les ions argent pour obtenir après révélation une photographie de la répartition des atomes d'hydrogène [3, 10-12]. L'utilisation de cette technique a permis de mettre en évidence, dans un acier ferrito-perlitique, l'accumulation d'hydrogène au niveau des joints de grains ainsi que le piégeage préférentiel de l'hydrogène dans la phase perlitique (Figure I.1.4).



**Figure I.1.4.** Mise en évidence de la présence d'hydrogène (repéré par les liserés blancs) aux joints de grains et dans la phase perlitique par la technique de « microprint » [12].

Le piégeage modifie la vitesse de diffusion de l'hydrogène dans le métal, ceci a été mis en évidence dans un acier bainitique 2,25Cr-1Mo en mesurant le flux de perméation [13], intrinsèquement relié au coefficient de diffusion, au cours de la déformation plastique (Figure I.1.5). Trois stades se dégagent, d'abord le flux de perméation augmente jusqu'à saturation correspondant à l'installation d'un régime stationnaire. Puis quand la sollicitation mécanique commence, le flux reste stable dans le domaine de la déformation élastique. En revanche une fois atteint le seuil de la déformation plastique, le flux chute témoignant d'une vitesse de diffusion plus faible en raison de l'augmentation des sites de piégeage par la déformation plastique.



**Figure I.1.5.** Mesure du flux de perméation de l'hydrogène dans un acier bainitique 2,25Cr-1Mo au cours de la déformation [13].

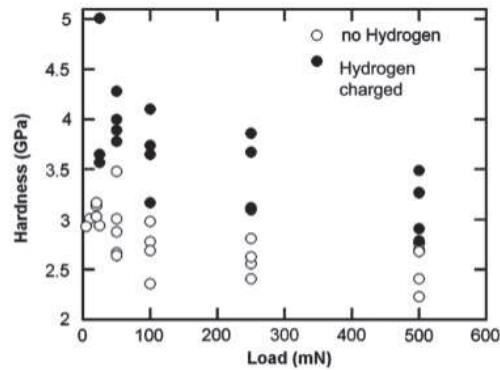
### I.1.c. Influence de l'hydrogène sur le comportement du matériau

Au cours d'un chargement mécanique, comme l'illustre la Figure I.1.5, l'augmentation des dislocations au cours de la déformation plastique peut modifier la diffusion de l'hydrogène dans le matériau ; réciproquement, la diffusion de l'hydrogène peut modifier la nucléation et le mouvement des dislocations.

#### *i. Interactions hydrogène-plasticité*

Les interactions entre l'hydrogène et les dislocations peuvent être mises en évidence par des mesures de nanoindentation. Cette technique présente l'avantage de détecter la nucléation des dislocations dans un très petit volume du matériau. La réalisation de mesures de nanoindentation dans un acier austénitique 21Cr-6Ni-9Mn avant et après chargement en hydrogène a montré qu'à force équivalente, la dureté est plus importante dans l'échantillon chargé en hydrogène [14], comme le montre la Figure I.1.6.

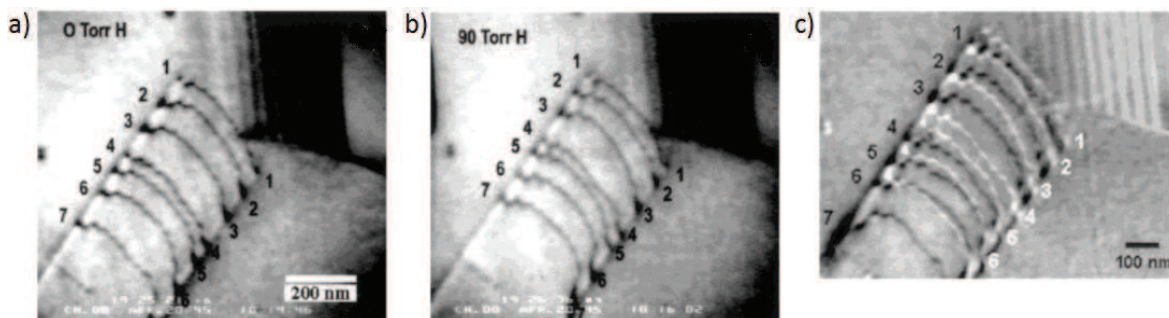




**Figure I.1.6.** Mesures de dureté en fonction de la charge appliquée dans un acier austénitique 21Cr-6Ni-9Mn montrant que la présence d'hydrogène entraîne une augmentation de 30% de la dureté à charge équivalente [14].

La compréhension des interactions entre l'hydrogène et la plasticité nécessitent des observations à l'échelle des dislocations par observation MET. Ce type de travaux n'entrant pas dans le cadre de la présente étude, seules quelques illustrations sont présentées.

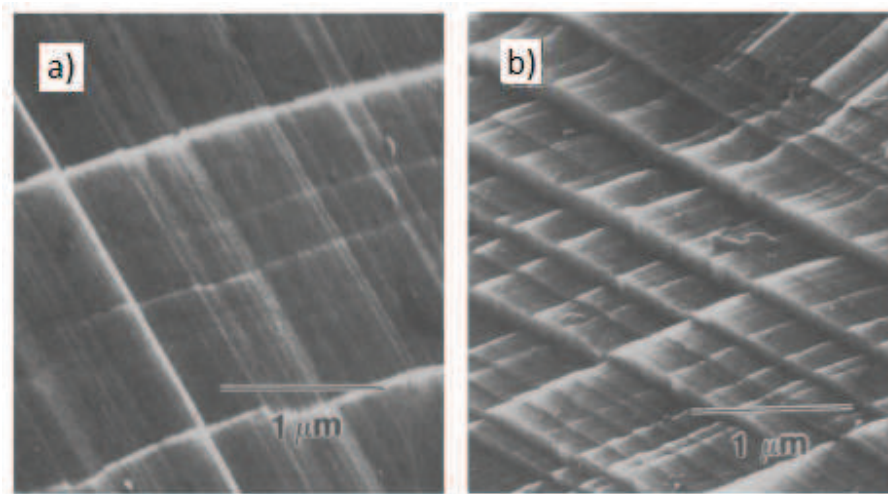
Les travaux de Ferreira (cité dans [15]) sur un acier 310S ont permis de montrer l'influence de l'hydrogène sur le transport des dislocations. Des essais de traction in situ dans un microscope électronique à haute tension équipé d'une cellule environnementale (HVEM) ont été effectués. L'essai est démarré sans hydrogène, puis à charge constante l'hydrogène gazeux est introduit progressivement jusqu'à une pression de  $1,2 \cdot 10^4$  Pa. Les observations mettent en évidence que l'introduction de l'hydrogène tend à diminuer les distances entre dislocations dans les empilements de dislocations (Figure I.1.7).



**Figure I.1.7.** Empilement de dislocation : a) à la fin du chargement ; b) évolution de l'empilement en présence d'hydrogène et c) superposition des images a) et b) [15].

A l'échelle du MEB, Abraham et Altstetter [16] ont comparé les lignes de glissement sur la surface d'éprouvettes de traction d'un acier austénitique 310S après essai à rupture. L'une des éprouvettes avaient été préalablement chargées en hydrogène et l'autre non, les deux essais ayant été réalisés à 295 K et à une vitesse de déformation de  $5,5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ . L'observation de la surface des éprouvettes a montré que dans l'essai sans hydrogène les bandes de glissement sont plus fines et plus espacées (Figure I.1.8).

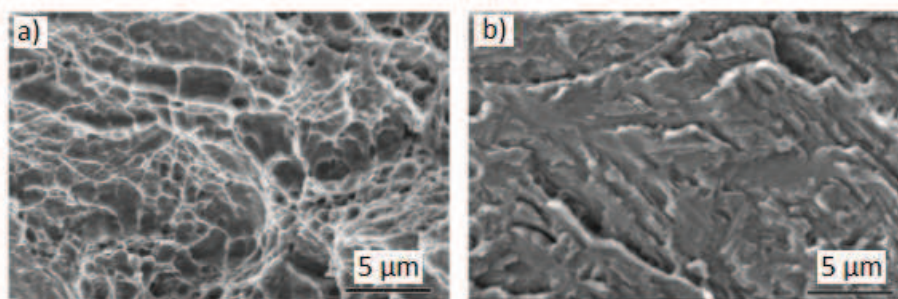




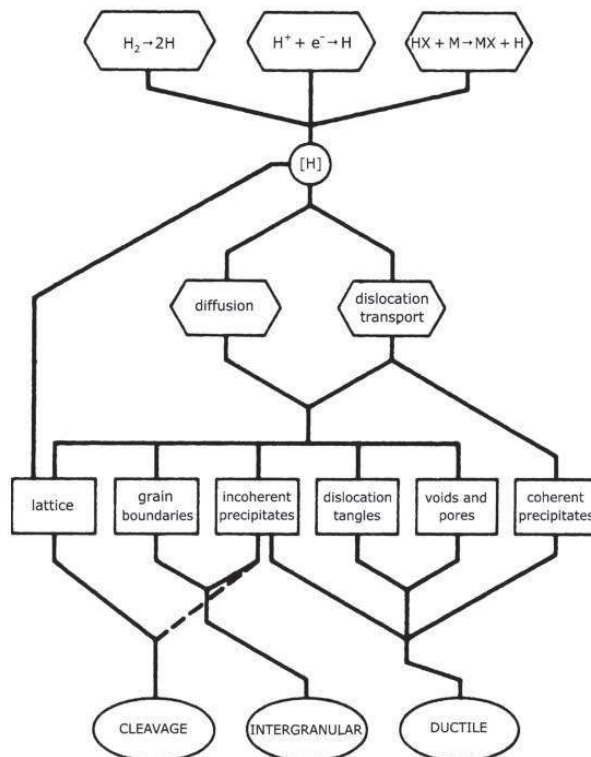
**Figure I.1.8.** Surface d'éprouvettes de traction après essai jusqu'à rupture : a) essai sans hydrogène et b) essai avec pré-chargement en hydrogène [16].

## ***ii. Mécanismes de fragilisation***

Les interactions se produisant entre l'hydrogène et le matériau peuvent conduire à un changement dans le mode de rupture du matériau. Il est généralement considéré qu'une rupture ductile en conditions standards évoluera vers un caractère fragile intergranulaire ou de clivage après exposition à l'hydrogène [4, 17, 18]. La Figure I.1.9 montre des fractographies réalisées sur un acier martensitique haute résistance rompu par flexion. L'échantillon non préalablement chargé en hydrogène présente un faciès de type ductile alors que celui ayant été chargé en hydrogène par voie cathodique avant l'essai présente un faciès de rupture de type quasi-clivage. L'évolution du mode de rupture est conditionnée par la position occupée par l'hydrogène dans le matériau (sites interstitiels, dislocations, précipités, etc.), comme il est illustré à la Figure I.1.10 telle que rapportée par Louthan Jr [18].



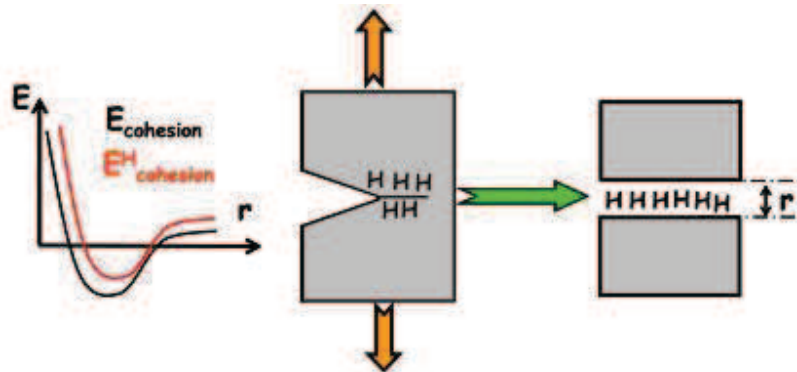
**Figure I.1.9.** Fractographies MEB après essais de flexion 4 points : a) rupture ductile avec coalescence de cavités dans l'échantillon non chargé ; b) rupture par quasi-clivage dans l'échantillon chargé en hydrogène [17].



**Figure I.1.10.** Schéma des différentes localisations de l'hydrogène dans le matériau et de leurs conséquences sur le mode de rupture [18].

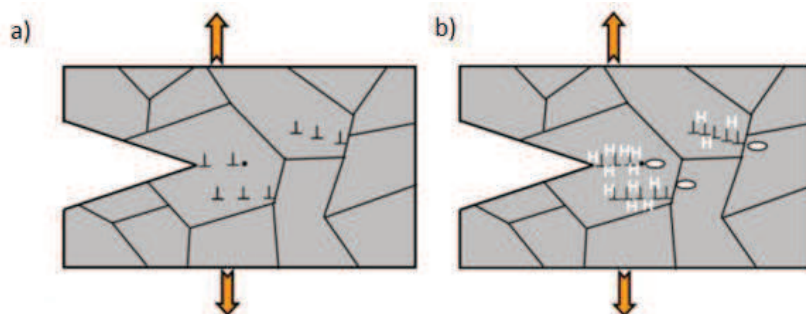
Cinq grands mécanismes de FPH se distinguent dans la littérature, ces mécanismes sont supposés intervenir après la pénétration de l'hydrogène dans le métal :

- la rupture consécutive à la formation d'hydrures notamment pour des métaux tels que le titane, le zirconium, le niobium ou le tantale [19], où la concentration d'hydrogène et les contraintes appliquées conduisent à la précipitation d'hydrure fragile dans le matériau par réaction chimique. La fissure de type fragile s'amorce dans l'hydrure quand le champ de contrainte devient suffisamment important, puis se propage dans la matrice [20] ;
- la rupture par décohesion, s'appuyant sur l'hypothèse que la présence de l'hydrogène dans le matériau perturbe le champ électronique du métal conduisant à une diminution de l'énergie de cohésion interatomique et une rupture fragile. Ce mécanisme de rupture est communément appelé modèle HID (Hydrogen-Induced Decohesion) [3, 21, 22] et est illustré par la Figure I.1.11 ;



**Figure I.1.11.** Schématisation du modèle HID.  $E_{\text{cohésion}}$  correspond à l'énergie de cohésion du matériau sans hydrogène et  $E^{\text{H}}_{\text{cohésion}}$  à l'énergie de cohésion du matériau sous hydrogène [3].

- la rupture par localisation de la plasticité, considérant que l'hydrogène dans le matériau provoque une forte localisation de la plasticité par la formation d'atmosphères de Cottrell d'hydrogène autour des dislocations, provoquant une augmentation de la mobilité des dislocations et une diminution de leur écartement respectif. Il s'agit du mécanisme HELP (Hydrogen-Enhanced Localized Plasticity) [3, 23, 24] décrit à la Figure I.1.12.



**Figure I.1.12.** Schématisation du modèle HELP : a) déformation sans hydrogène ; b) déformation avec hydrogène [3].

- le modèle AIDE (Adsorption-Induced Dislocation Emission) [3, 25], stipulant que la rupture est basée sur l'effet de l'hydrogène adsorbé ou situé dans les sites interstitiels des quelques premières couches atomiques conduisant à la nucléation et l'émission de dislocations depuis la surface du matériau (Figure I.1.13) ;

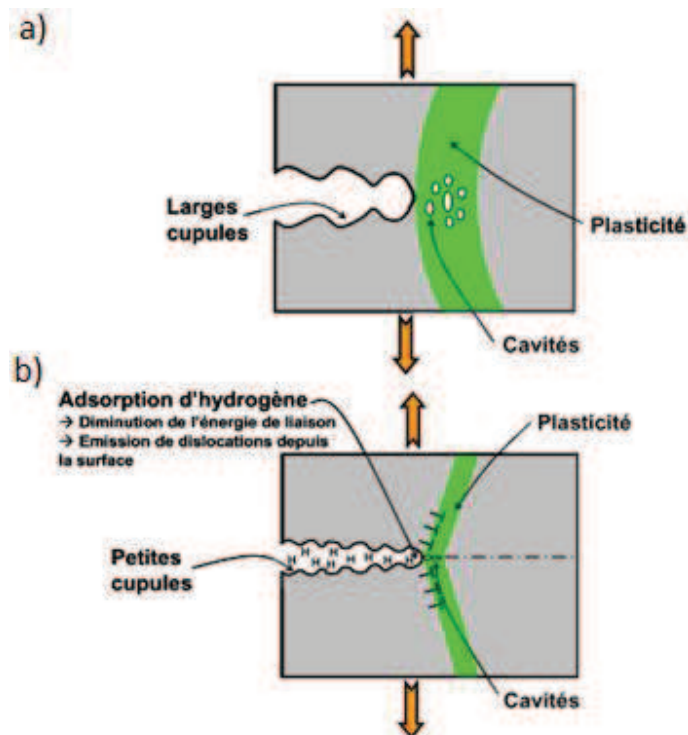


Figure I.1.13. Schématisation du modèle AIDE : a) rupture par déformation plastique ; b) rupture assistée par hydrogène [3].

- le modèle HESIVE (Hydrogen-Enhanced Strain-Induced Vacancies) [3], fondé sur l'hypothèse que l'hydrogène dans le matériau assiste la création de lacunes lors de la déformation plastique, la fragilisation intervenant suite à une surconcentration en lacunes, dans le cadre de ce mécanisme, l'hydrogène ne serait pas directement lié à la rupture (Figure I.1.14).

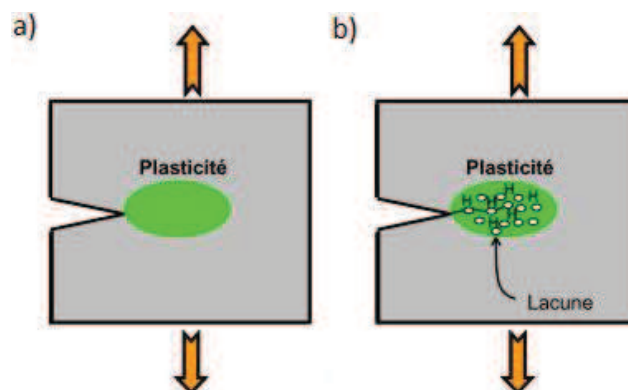


Figure I.1.14. Schématisation du modèle HESIVE : a) rupture sans hydrogène ; b) rupture avec hydrogène [3].

## 1.2. Caractérisation expérimentale de la FPH

### 1.2.a. Méthodes de chargement et essais associés

Expérimentalement la FPH est identifiée par un changement du comportement du matériau soumis à l'hydrogène. Généralement il s'agit d'une transition du mode de rupture, de ductile à fragile, et ce pour des contraintes parfois inférieures aux contraintes de service du matériau [1, 3, 26]. L'étude des mécanismes de la FPH en laboratoire a nécessité le développement de procédés expérimentaux permettant l'introduction d'hydrogène à partir de milieu aqueux ou gazeux, et/ou de soumettre le matériau à différentes sollicitations mécaniques.

#### i. Chargement en hydrogène par voie aqueuse

L'hydrogène est introduit à partir d'un milieu aqueux par un procédé dit électrolytique consistant à plonger le matériau dans une solution productrice d'ions hydrogène et d'y appliquer une densité courant. Le matériau considéré est alors placé en tant que cathode du système comme l'illustre la Figure I.2.1 [27, 28] dans le cas d'un acier.

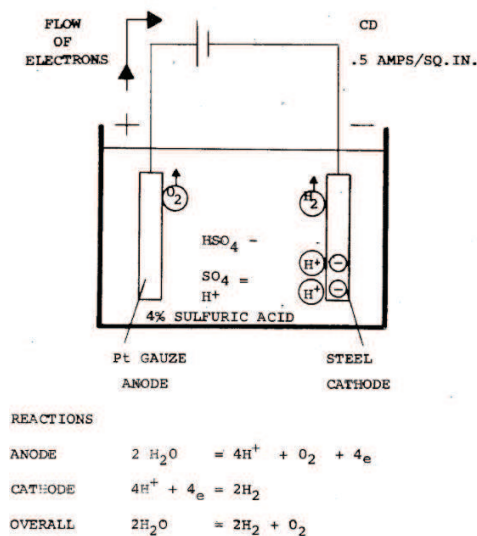
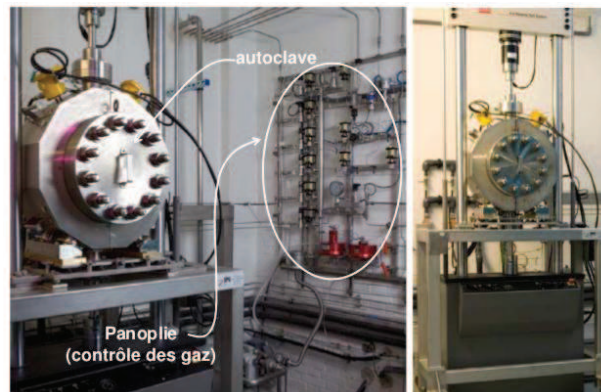


Figure I.2.1. Représentation schématique du principe de chargement en hydrogène par voie cathodique [28].

#### ii. Chargement en hydrogène par voie gazeuse

L'introduction de l'hydrogène par voie gazeuse est réalisée en exposant le métal à une atmosphère d'hydrogène pur [3, 26], ce qui nécessite une enceinte de confinement qui peut être une autoclave (Figure I.2.2) ou une cellule d'essai dédiée, comme dans le cas de l'essai de disque (voir paragraphe I.2.b.) [29]. La gamme de pression utilisée avec ce type de chargement peut s'étendre de 0,1 MPa à plusieurs centaines, la valeur de 30 MPa correspondant à la pression de

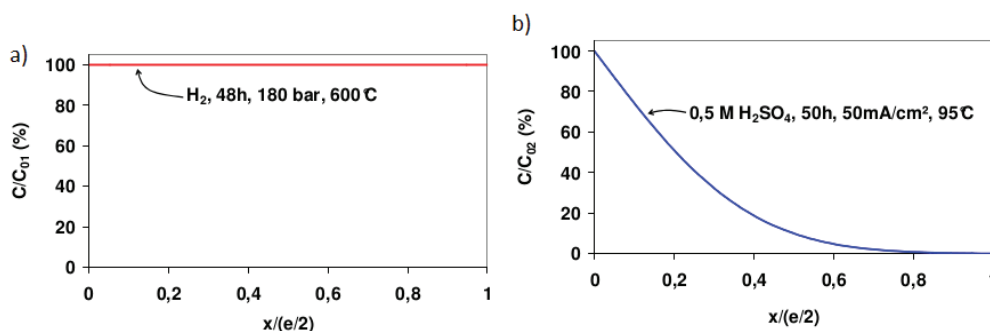
stockage maximale autorisée par la norme ISO 11114-4 traitant du stockage de l'hydrogène gazeux en bouteille.



**Figure I.2.2.** Installations expérimentales pour la réalisation d'essais de traction en autoclave sous environnement hydrogène gazeux [3].

### iii. Différences entre les méthodes de chargement

D'après les travaux de Brass [30] évoqués par Moro [3], il semble que la concentration en hydrogène dans le matériau dépend fortement du mode de chargement. Ainsi pour des échantillons d'acier 316L de dimensions identiques, un chargement par voie gazeuse a engendré un profil de concentration homogène dans la demi épaisseur  $e/2$  de l'échantillon alors que dans le cas d'un chargement par voie cathodique le profil présente un pic en surface puis une diminution jusqu'à une valeur nulle à mesure que l'on s'approche du cœur du matériau comme le montre la Figure I.2.3.  $C_{01}$  et  $C_{02}$  désignent les concentrations maximales d'hydrogène pouvant être introduites dans le matériau par chargement gazeux ou cathodique [3].



**Figure I.2.3.** Evolution du ratio de la concentration d'hydrogène  $C$  dans le matériau sur la concentration d'hydrogène maximale  $C_0$  pouvant être introduite lors : a) d'un chargement gazeux et b) cathodique en fonction de la profondeur, désignée par  $x$  [3].

### iv. Essais mécaniques de caractérisation de la FPH

L'influence de l'hydrogène sur le comportement mécanique macroscopique est directement mise en évidence à l'aide d'essais mécaniques sur des éprouvettes ayant été préalablement chargées en hydrogène ou non. La réponse du matériau dépendant principalement du mode de chargement



(gazeux ou par voie cathodique) et de la vitesse de sollicitation. Les principales techniques utilisées sont ici répertoriées.

### Essais de traction et de flexion

L'utilisation de ces techniques a permis d'étudier et de mettre en évidence les phénomènes de FPH pour de nombreux matériaux [3, 31-37]. Les essais de traction, dont une illustration en autoclave est donnée à la Figure I.2.2, et de flexion permettent de mettre directement en évidence l'influence de l'hydrogène sur la déformation plastique et la rupture. Les résultats présents dans la littérature sont nombreux et ont permis de montrer que le caractère fragilisant de l'hydrogène s'observe par une diminution des propriétés mécaniques du matériau (Figure I.2.4) et d'un changement dans le mode de rupture (Figure I.2.5).

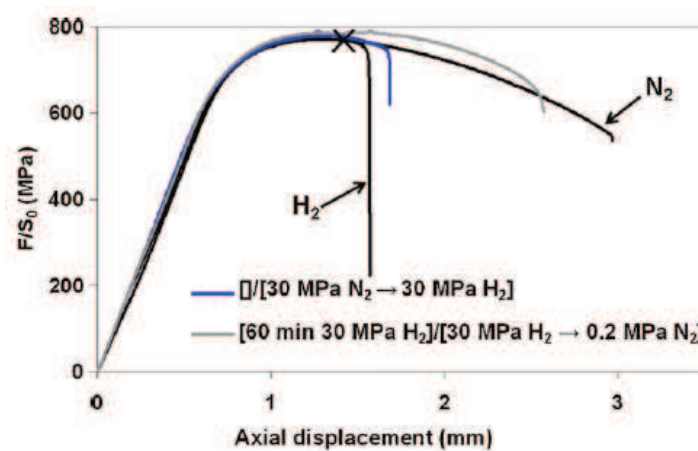


Figure I.2.4. Résultats d'essais de traction en autoclave pour un acier X80 [36].

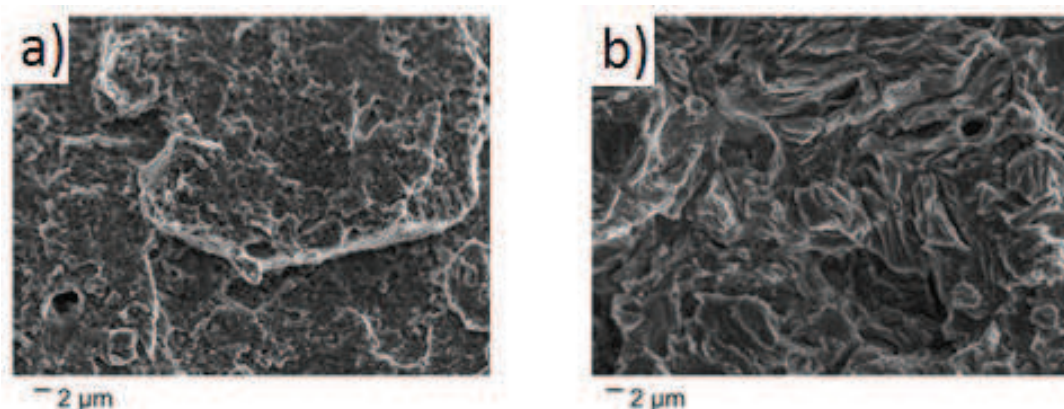
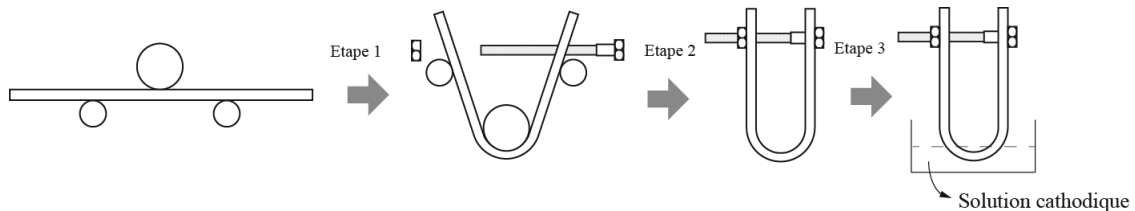


Figure I.2.5. Aspect d'un faciès de rupture d'un acier XC90 : a) rupture ductile avec présence de cupules sous air ; b) rupture intergranulaire sous hydrogène [34].

### Pliage en U

L'essai de pliage en U (« U-bend test » [38-40]), essai de rupture différée sous contrainte, a été utilisé pour l'étude de la FPH dans des aciers dual-phase [40]. L'essai, illustré à la Figure I.2.6,

consiste à plier en forme de U de l'échantillon, le maintenir plié (à l'aide d'une fixation par boulon par exemple) puis l'immerger dans une solution électrolytique provoquant la pénétration d'ions hydrogène dans le matériau. La rupture différée révèle l'effet des interactions hydrogène-champs mécaniques permettant d'étudier l'influence des champs de contraintes, de déformation et d'hydrogène sur la fragilisation.

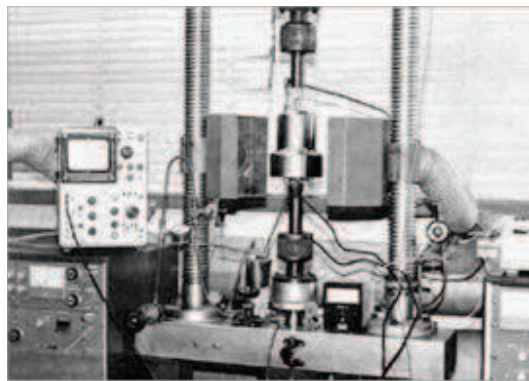


**Figure I.2.6.** Illustration du pliage en U [38].

### *Essais de ténacité*

Les essais de propagation de fissure en fatigue sont réalisés sur des éprouvettes CT pré-fissurées [41]. Cet essai est notamment mentionné dans la norme ISO 11114 – méthodes B et C [29], cadre dans lequel les essais sont effectués dans une cellule pressurisée à au moins 15 MPa d'hydrogène (Figure I.2.7). Dans la méthode B, l'éprouvette est soumise à une contrainte augmentant par palier jusqu'à propagation de la fissure permettant ainsi de mesurer le facteur d'intensité de contrainte  $K_{IH}$  du matériau, si  $K_{IH} \geq (60/950) * Rm$  alors le matériau convient pour le stockage de l'hydrogène à 30 MPa.

Et dans la méthode C, l'éprouvette est chargée en contrainte constante (également possible en déplacement constant) à un facteur d'intensité de contrainte  $K_{IAPP} = (60/950) * Rm$  maintenu pendant une durée donnée (au moins 1000 h). Une fois le chargement terminé, la fissure est mesurée, si aucune croissance de fissure n'est constatée, le matériau convient pour le stockage de l'hydrogène.



**Figure I.2.7.** Appareillage de test pour les méthodes B et C de la norme ISO 11114 [29].



## I.2.b. Essai de disque

L'essai de disque entre dans le cadre des normes ISO 11114 [29] relative à la compatibilité entre les matériaux des bouteilles et robinets avec les contenus gazeux et AFNOR E29U traitant des bouteilles et récipients pour le conditionnement d'hydrogène comprimé [42]. Il a permis de définir un indice de fragilisation empirique I utilisé pour sélectionner les matériaux compatibles pour le stockage de l'hydrogène ou d'autres gaz comprimés fragilisant.

### i. Description de l'essai

Le schéma de l'appareillage est présenté la Figure I.2.8. L'essai consiste en un gonflement à vitesse de pression de gaz constante et jusqu'à rupture d'un disque métallique. La périphérie du disque est bloquée entre deux brides boulonnées, l'étanchéité étant assurée par un joint torique, en indium lors des essais à vitesse lente (inférieure à 1 MPa/min) et en élastomère à vitesse plus élevée (supérieure à 1 MPa/min). Un flux de gaz est alors envoyé dans la cellule d'essai et entre en contact avec le disque sur la surface inférieure de sa partie non bridée.

La vitesse de montée en pression peut varier entre 0,01 et 100 MPa/min (correspondant à des vitesses de déformations comprises entre  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$  et  $10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ) [42]. La rupture totale ou partielle du disque est détectée par la chute de pression de gaz dans la cellule d'essai initialement étanche. L'essai est interrompu lorsque le capteur de pression placé au-dessus du disque détecte une chute de pression de 10%. La pression de rupture est définie comme la pression maximale obtenue avant la chute.

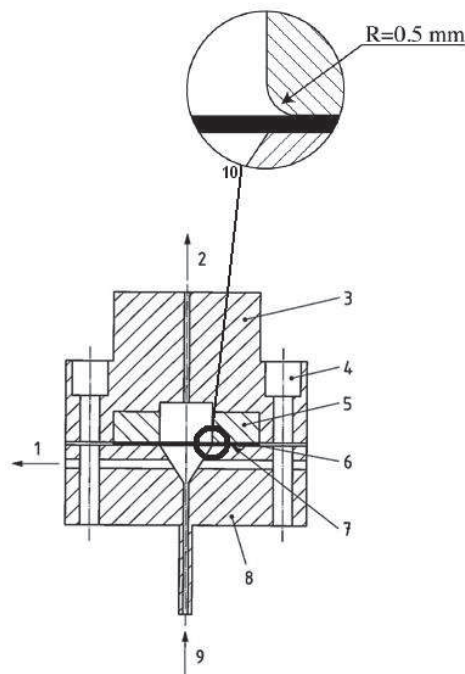


Figure I.2.8. Schéma de l'essai de disque [29].

La Figure I.2.8 est un schéma de l'instrumentation de l'essai de disque avec [29] :

- 1. Voie d'évacuation et d'ajustement du flux
- 2. Voie de décharge
- 3. Bride supérieure
- 4. Trou de boulon
- 5. Anneau d'acier à haute résistance
- 6. Disque
- 7. Joint torique
- 8. Bride inférieure
- 9. Admission de gaz
- 10. Rayon de courbure

Les conditions d'exécution d'un essai de disque sont décrites par les normes [29, 42] :

- dimensions du disque : diamètre  $d = 58 \text{ mm}$  (+/- 0,5 mm) ; épaisseur  $e = 0,75 \text{ mm}$  (+/- 0,005 mm) ; planéité : flèche inférieure à 1/10 mm ;
- état de surface du disque : rugosité = profondeur inférieure à 0,001 mm ; pas de trace d'oxydation (contrôle par examen visuel) ;
- dégraissage du disque et contrôle de l'épaisseur en 4 points diamétralement opposés 2 à 2 puis calcul d'une épaisseur moyenne ;
- détermination de la dureté du disque (par exemple Vickers) sur la couronne extérieure afin de vérifier que l'usinage n'a pas modifié les caractéristiques initiales du matériau ;
- purge de la cellule par pompage sous vide pour éliminer les traces d'humidité absorbées sur les parois, il est possible d'effectuer des cycles de balayages avec le gaz utilisé suivis de pompage sous vide pour améliorer le nettoyage ;
- contrôle de la pureté du gaz (la pureté doit être supérieure à 99,9995% en volume) ;
- réglage du débit de gaz pour obtenir la vitesse de montée en pression définie ;
- isolement de la cellule et début de l'essai.

Dans le cas où l'épaisseur du disque mesurée diffère de celle établie par la norme il convient de corriger les pressions de rupture en les ramenant à la valeur nominale correspondant à un essai sur un disque d'épaisseur standard ( $e_0 = 0,75 \text{ mm}$ ).

La pression de rupture corrigée  $p$  est donnée par la formule [29, 42] :

$$P = \frac{(P_{rupt} \times e_0)}{e_m} , \quad (I.2.1)$$

où  $P$  pression corrigée (MPa) ;  $P_{rupt}$  pression de rupture réelle (MPa) ;  $e_0$  épaisseur standard (mm) ;  $e_m$  épaisseur mesurée (mm).

## **ii. Indice de fragilisation**

L'exploitation des résultats permet de caractériser la sensibilité des matériaux face à l'hydrogène en comparant les pressions de rupture obtenues sous gaz neutre (typiquement hélium) et sous hydrogène.

L'indice de fragilisation  $I$  est alors défini comme le rapport de la pression de rupture sous hélium divisée par la pression de rupture sous hydrogène et donné par la formule [29, 42] :

$$I = \frac{P_{He}}{P_{H_2}}, \quad (I.2.2)$$

où  $I$  indice de fragilisation, sans unité ;  $P_{He}$  pression de rupture sous hélium théorique, correspondant à la même vitesse de montée en pression que l'essai hydrogène, calculée par régression linéaire à partir des pressions de rupture corrigées sous hélium (MPa) ;  $P_{H_2}$  pression corrigée sous hydrogène.

L'indice  $I$  permet ainsi de classer les matériaux testés [29, 42] :

- $I = 1$ , il n'y a pas de fragilisation par l'hydrogène ;
- $I > 2$ , le matériau est trop fragilisé et ne doit pas être utilisé en milieu hydrogène.

La valeur du seuil ( $I = 2$ ) ayant été déterminée par comparaison du comportement en service de nombreux matériaux et de leur indice  $I$ .

L'essai de disque a permis d'étudier le comportement de matériaux mis au contact d'hydrogène gazeux. Son utilisation a d'ailleurs été mise en œuvre pour établir que :

- un acier inoxydable 21-6-9 (21% Cr, 6% Ni, 9% Mn) est insensible à l'hydrogène gazeux (Figure I.2.9) [43] ;
- un revêtement d'or, de cadmiun ou d'aluminium pouvait protéger plusieurs mois des disques d'acier 35 CrNiMo 16 qui auraient rompu rapidement en conditions normales [44] ;
- la variation de traitement thermique a une importance primordiale sur la tenue du matériau vis-à-vis de l'hydrogène comme il a été observé sur un acier AISI 4135 (voir Figure I.2.10) [45] ;
- la fragilisation se manifeste par une amorce de rupture de type fragile située au droit de la bride de serrage (voir Figure I.2.11) [46].

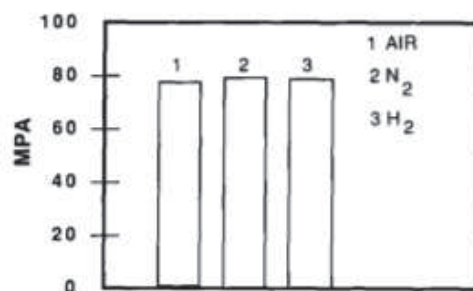
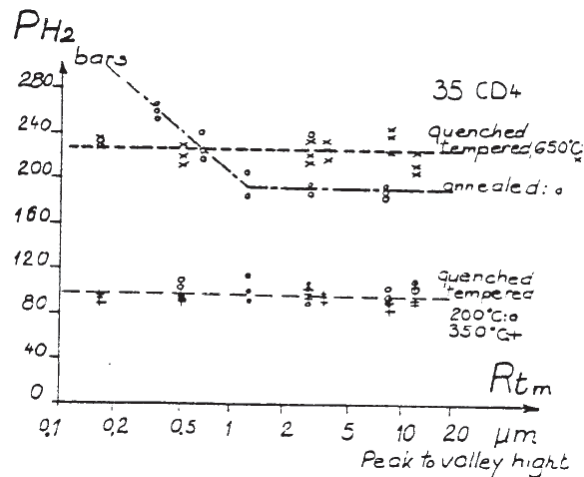
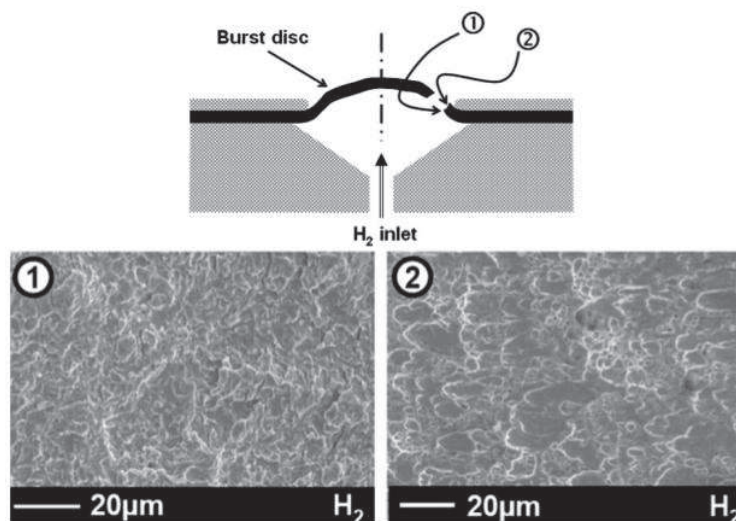


Figure I.2.9. Pression de rupture de un acier 21-6-9 dans différents gaz [43].



**Figure I.2.10.** Influence de l'état de surface et du traitement thermique sur la pression de rupture au cours d'un essai de disque sous  $H_2$  pour différents traitements thermiques [45].



**Figure I.2.11.** Schéma de localisation de la rupture et observations de la surface de rupture : (1) amorce de type fragile avec quasi-clivage et (2) propagation ductile [46].

L'utilisation de l'essai de disque permet de varier aisément les conditions opératoires :

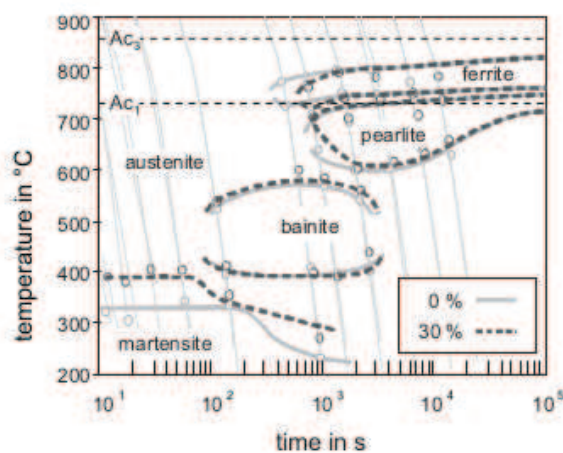
- réalisation d'essais pour une échelle de température allant de 20 à 900°C et la réalisation de chargements simple ou cyclique [47] ;
- fabrication d'éprouvettes simples à partir de tôles fines avec contrôle de la sévérité de l'essai en effectuant des entailles dans le disque [1, 3] ;
- possibilité d'automatisation et de faire varier la vitesse de sollicitation sur une gamme très large [45].

Le principal inconvénient rencontré lors de l'utilisation de l'essai de disque est que la fragilisation se produit dans une zone de concentrations de contraintes où la mesure de déformées

est quasiment inaccessible, la mesure de la flèche du disque ne donnant qu'une information globale [1] ;

### iii. Sélection de matériau pour le stockage

L'utilisation de l'essai de disque a notamment permis de sélectionner la nuance d'acier AISI 4135 (normes internationales correspondantes 35CD4 ou 34CrMo4) pour la fabrication des bouteilles destinées au stockage de l'hydrogène gazeux. Il s'agit d'un acier Cr-Mo trempé revenu dont la microstructure est soit bainitique soit martensitique en fonction de la vitesse de la trempe (Figure I.2.12) [48].



**Figure I.2.12.** Diagramme TRC (Transformation en Refroidissement Continu) de l'acier 35CD4 à 0% et 30 % de déformation [48].

Les bouteilles sont fabriquées en une seule pièce à partir d'une billette ou d'une plaque. Le but principal étant de ne pas effectuer de soudure sur la structure car cela pourrait causer des endommagements (concentration de contrainte, inclusions d'hydrogène) sur le long terme. Les différentes étapes de fabrication sont [49] :

- chauffage de la billette par immersion dans de l'huile chaude ;
- des emboutissages successifs sur des presses pour allonger la billette et former le fond de la bouteille (Figure I.2.13) ;
- une étape de fluotournage consistant à bloquer le fond de la bouteille dans un mandrin pendant que l'autre extrémité de la bouteille est chauffée, le métal est alors repoussé par une molette automatique pour former le goulot (Figure I.2.14) ;
- traitement thermique d'austénisation des bouteilles ;
- trempe à l'huile puis revenu ;
- l'extérieur de la bouteille subit un grenailage pour améliorer l'état de surface ;
- taraudage du goulot et lavage à l'eau chaude de l'intérieur de la bouteille ;
- test de pressurisation à 1,5 fois la pression de service puis lavage à l'eau chaude de l'intérieur de la bouteille ;
- les informations spécifiques à la bouteille sont gravées sur le col : dureté, contenance, pression testée, pression de service, numéro de service.

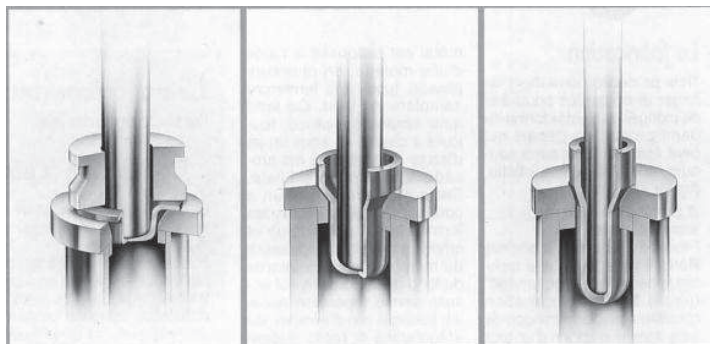


Figure I.2.13. Etapes d'emboutissage pour former le fût de la bouteille [49].

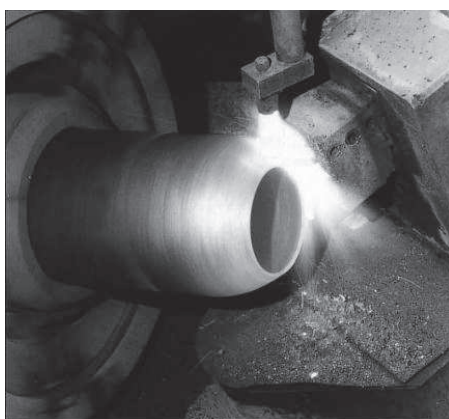


Figure I.2.14. Opération de fluotournage pour modeler le goulot de la bouteille [49].

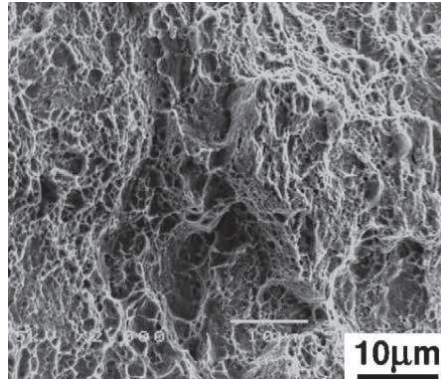
### I.2.c. Comportement de l'acier AISI 4135

#### *i. Mécanismes de fissuration en milieu inerte*

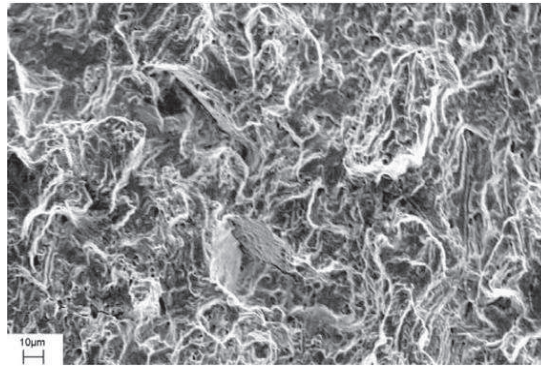
L'acier AISI 4135 présente un faciès de rupture de type ductile lorsque celle-ci a lieu en milieu inerte (c'est-à-dire sans corrosion/fragilisation par l'hydrogène). Les résultats obtenus ont permis de mettre en évidence la présence d'un faciès de rupture de type ductile issu de la coalescence de microcavités (voir Figure I.2.15) [50].

De plus, les travaux réalisés par Firrao [51] sur l'expertise post-mortem d'une bielle de moteur quatre temps ayant cassé en service ont montré que la fissuration en fatigue donne aussi lieu à un faciès de rupture de type ductile avec la coalescence de microcavités (Figure I.2.16).





**Figure I.2.15.** Aspect d'un faciès de rupture pour un acier AISI 4135 trempé revenu après essai de traction en milieu inerte [50].



**Figure I.2.16.** Aspect d'un faciès de rupture d'un acier AISI 4135 après fissuration en fatigue [51].

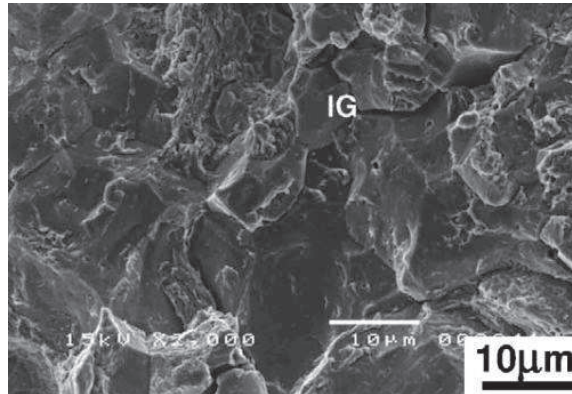
## ***ii. Fissuration en présence d'hydrogène***

Des essais de traction lente réalisés sur des éprouvettes entaillées à mi-longueur composées d'une nuance d'acier AISI 4135 trempé à 860°C puis revenu à 460°C [50]. Le chargement électrochimique en hydrogène est effectué en amont des essais et la vitesse de déformation est de  $8,3 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$  (0,005 mm/min), très inférieure aux vitesses rencontrées au cours d'un essai de disque. Le choix de cette vitesse a été fait pour assurer la diffusion de l'hydrogène dans le matériau au cours des essais. La Figure I.2.17 met en évidence que l'apport d'hydrogène provoque une fracture de type fragile avec l'apparition d'un faciès de rupture intergranulaire après un chargement électrochimique.

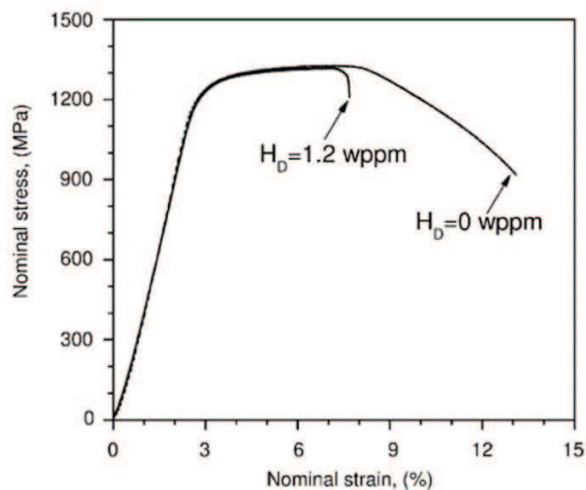
En revanche la comparaison des courbes de traction obtenues avec et sans pré-chargement en hydrogène montre que la présence d'hydrogène dans le matériau ne modifie pas l'écroutissage du matériau [50]. La principale différence entre les courbes se situant au niveau du Rm, qui est bien inférieur lors de l'essai avec pré-chargement en hydrogène par comparaison avec l'essai sans pré-chargement comme le montre la Figure I.2.18.

De plus, il a aussi été mis en évidence que le traitement thermique subi par un acier AISI 4135 pouvait influencer sur la fragilisation [52]. Deux traitements thermiques ont été confrontés, nommés

B13 et B15 (Tableau I.2.1), et ont montré des différences significatives sur le comportement du matériau après chargement en hydrogène par exposition à une atmosphère corrosive (température moyenne de 15°C et humidité relative moyenne de 76%) pendant 18 mois (Figure I.2.19). Cependant, dans les deux cas la rupture est de type fragile intergranulaire.



**Figure I.2.17.** Aspect d'un faciès de rupture pour un acier AISI 4135 trempé revenu obtenu après essai de traction sur une éprouvette pré-chargée en hydrogène [50].



**Figure I.2.18.** Courbes de traction obtenues avec et sans pré-chargement en hydrogène pour un acier AISI 4135 [50].

**Tableau I.2.1.** Traitements thermiques des aciers exposés [52].

Acier	Traitement thermique		UTS $\sigma_B$ (MPa)	YS $\sigma_{0,2}$ (MPa)	EL (%)	RA (%)
	Trempe	Revenu				
B13	1133 K, 1h	733 K, 1h	1310	1202	16	53
B15	1153 K, 1h	633 K, 1h	1492	1304	14	49



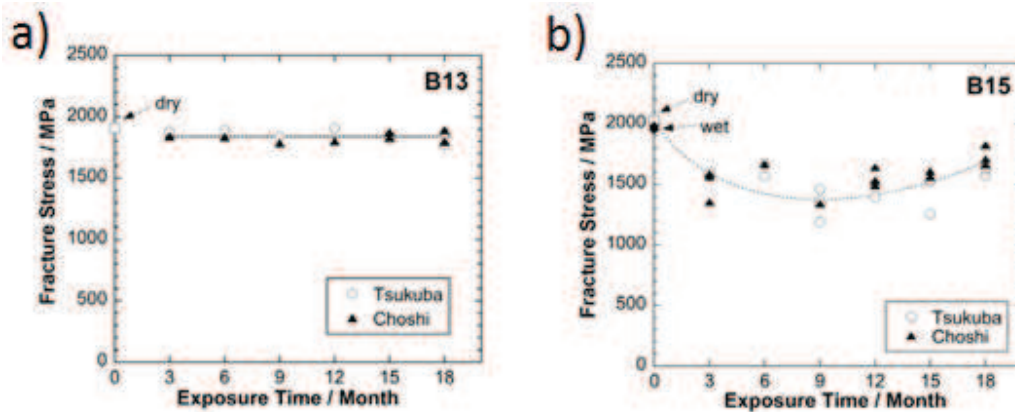


Figure I.2.19. Variations de la contrainte à rupture en fonction du temps d'exposition : a) B13 ; b) B15 [52].

D'une manière globale, l'hydrogène fragilise la microstructure de l'acier AISI 4135. Cette fragilisation change le mode de rupture du matériau [50], et conduit à un faciès de rupture fragile intergranulaire.

Cependant, les travaux de Jouinot, présentés à la Figure I.2.10, montrent que la sensibilité de l'acier AISI 4135 à l'hydrogène évolue avec les traitements thermiques, impliquant une variation de l'indice de fragilisation. Notamment l'état trempé-revenu à 650°C, est le seul état assurant une pression de rupture sous hydrogène supérieure à 20 MPa pour les valeurs de rugosité considérées [46]. Il convient par ailleurs de noter que l'état trempé-revenu à 650°C correspond aux conditions de fabrication des bouteilles [49]. De plus, l'indice de fragilisation calculé à partir d'échantillons prélevés dans une bouteille de qualité hydrogène est de  $I = 1,6$  [53] confirmant la possibilité d'utiliser l'acier AISI 4135 pour le stockage de l'hydrogène gazeux à des pressions inférieures à 30 MPa.

### I.3. Modélisation des interactions hydrogène-matériau

#### I.3.a. Modélisation de la diffusion

##### i. Quantification phénoménologique de l'hydrogène introduit

Dans l'hypothèse de l'introduction de faibles quantités d'hydrogène (inférieure à 0,2 ppm masse pour les aciers) [26], l'activité de l'hydrogène dans le métal peut être exprimée par la loi de Sieverts [1, 2] :

$$a_{H_{abs}} = K P_{H_2}^{1/2}, \quad (I.3.1)$$

où  $a_{H_{abs}}$  est l'activité de l'hydrogène (sans dimensions) qui caractérise la capacité de l'hydrogène à pénétrer dans le matériau ;  $P_{H_2}$  pression d'hydrogène gazeux (atm ou Pa) ;  $K$  grandeur fonction des constantes de vitesse des réactions de dissociation et de transfert à l'interface gaz/solide.

Dans l'hypothèse d'une solution diluée, la solubilité, quantité maximale pouvant être dissoute, peut s'exprimer en fonction de la température et de la pression [3] :

$$S = S_0(P_{H_2})^{\frac{1}{2}} \exp\left(\frac{-\Delta H_s}{RT}\right), \quad (I.3.2)$$

où  $S$  solubilité de l'hydrogène dans le métal (ppm masse) ;  $S_0$  constante de solubilité de l'hydrogène (ppm masse.Pa<sup>-1/2</sup>),  $P_{H_2}$  pression (Pa) ;  $\Delta H_s$  enthalpie de dissolution molaire (J.mol<sup>-1</sup>) ;  $R$  constante molaire des gaz parfaits (J.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup>) ;  $T$  température (K).

Il découle de (I.3.1) et (I.3.2) que la solubilité de l'hydrogène dans le matériau est proportionnelle à son activité et dépend des conditions de pression et de température [26]. Cependant, ces facteurs ne sont pas exclusifs, la solubilité de l'hydrogène dans un métal considéré est très variable et est également influencée par la nature du matériau (éléments d'alliages, microstructure, seconde phase, etc.) [1].

Pour quantifier phénoménologiquement la quantité d'hydrogène absorbé, un taux de recouvrement  $\theta$  est utilisé, défini schématiquement par la Figure I.3.1. Serebrinsky *et al.* [54] ont montré que  $\theta$  est relié à la concentration d'hydrogène absorbé  $C_H$  en considérant une formulation isotherme de Langmuir-McLean :

$$\theta = \frac{C_H}{C_H + \exp\left(-\frac{\Delta g_b^0}{RT}\right)}, \quad (I.3.3)$$

où  $\Delta g_b^0$  représentant la différence d'énergie libre de Gibbs entre la surface et le volume.



Figure I.3.1. Définition du taux de recouvrement  $\theta$  sur la surface S [3].

## ii. Diffusion de l'hydrogène dans le matériau

Après absorption, l'hydrogène diffuse librement dans le matériau, il s'agit d'une diffusion interstitielle entrant dans le cadre des mécanismes classiques d'hétérodifusion à dilution infinie [2].

D'une manière générale, la diffusion de l'hydrogène dans le réseau est influencée par divers gradients (de concentration ou de température) et peut être décrite mathématiquement via les lois établies par Fick concernant la diffusion d'un gaz à travers un solide. Dans ce cas, il est considéré que la diffusion se produit selon un gradient de concentration [3] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{J} = -D_L \vec{\nabla} C_H \text{ (première loi)} \\ \frac{\delta C_H}{\delta t} = -\Delta J \text{ (deuxième loi)} \end{array} \right. , \quad (I.3.4)$$

où  $\Delta$  l'opérateur laplacien,  $\vec{\nabla}$  l'opérateur Nabla,  $\vec{J}$  flux de diffusion ( $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) ;  $C_H$  concentration en hydrogène ( $\text{m}^3$  de H. $\text{m}^{-3}$  de métal) ;  $t$  temps (s) ;  $D_L$  coefficient de diffusion de l'hydrogène ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) variant selon la loi d'Arrhenius [55] :

$$D_L = D_0 \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right), \quad (I.3.5)$$

$E_D$  est l'énergie d'activation du processus de diffusion.

La formulation (I.3.4) implique qu'à l'équilibre la concentration d'hydrogène est spatialement homogène et ne prend pas en compte l'influence du champ de contrainte sur la diffusion. Plus précisément, il convient de tenir compte de l'effet de la contrainte moyenne  $\sigma_m = \text{tr}[\sigma]/3$  ou de la « pression hydrostatique »  $P_H = -\sigma_m$ . La présence d'hydrogène dans le réseau cristallin conduit à une dilatation du réseau en raison de la valeur élevée de son volume molaire ( $V_H = 2.10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$  [2, 56]). Cette dilatation crée un champ de contrainte moyenne positive, c'est-à-dire une pression hydrostatique négative, dans le matériau, correspondant à un réseau dilaté favorisant ainsi la solubilité de l'hydrogène [3].

La prise en compte de l'influence de la pression hydrostatique sur la diffusion de l'hydrogène nécessite de reformuler la loi de Fick à l'aide des conditions thermodynamiques de l'équilibre en considérant que la diffusion s'arrête quand le potentiel chimique est le même partout [57].

Les travaux de Li *et al.* [58] ont permis de définir le potentiel chimique ( $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) de l'hydrogène  $\mu_H$  en fonction de la pression hydrostatique, de la concentration  $C_H$  et du volume molaire partiel de l'hydrogène  $V_H$  :

$$\mu_H(C_H) = \mu_H^0(C_H) + V_H P_H, \quad (I.3.6)$$

où  $\mu_H^0$  est le potentiel chimique de l'hydrogène en absence de contrainte et  $V_H$  est considéré indépendant de  $P_H$ .  $\mu_H^0$  s'écrit en fonction de  $C_H$  par :

$$\mu_H^0 = \mu_0 + RT \ln \left( \frac{C_H}{C_0} \right), \quad (I.3.7)$$

$\mu_0$  étant le potentiel de référence de l'hydrogène (en considérant une concentration de référence  $C_0$ ). L'équation (I.3.6) peut alors se réécrire :

$$\mu_H = \mu_0 + RT \ln \left( \frac{C_H}{C_0} \right) + V_H P_H. \quad (I.3.8)$$

Le flux d'hydrogène dans le réseau du métal s'exprime [3, 37] :

$$\vec{j} = -M_L C_H \vec{\nabla}(\mu_H), \quad (I.3.9)$$

où  $M_L$  est la mobilité de l'hydrogène dans le réseau cristallin (sites interstitiels). En incorporant (I.3.8) dans (I.3.9), et en posant  $D_L = M_L RT$  le flux d'hydrogène devient :

$$\vec{j} = -D_L \vec{\nabla} C_H - \frac{D_L V_H}{RT} C_H \vec{\nabla} P_H. \quad (I.3.10)$$

La formulation (I.3.10) décrit ainsi le flux d'hydrogène dans le matériau en fonction de la pression hydrostatique.

### I.3.b. Prise en compte du piégeage de l'hydrogène

La prise en compte phénoménologique du piégeage de l'hydrogène par les défauts cristallins dans la diffusion se fait en considérant que la concentration d'hydrogène dans le matériau est constituée d'une partie diffusive  $C_L$  et d'une partie piégée  $C_T$  avec  $C = C_L + C_T$ . D'après les travaux d'Oriani [59], en supposant que les deux populations d'hydrogène sont en équilibre thermodynamique on obtient :

$$\frac{\theta_T}{1 - \theta_T} = \frac{\theta_L}{1 - \theta_L} K_T, \quad (I.3.11)$$

où  $\theta_T$  est le taux d'occupation des pièges et  $\theta_L$  celui des sites interstitiels, et en considérant que  $C_L = N_L \theta_L$  et  $C_T = N_T \theta_T$ .  $N_T$  et  $N_L$  représentent respectivement le nombre de sites interstitiels et sites de piégeage par unité de volume du matériau.  $N_L$  est supposé constant, et  $N_T$  peut être relié phénoménologiquement à la déformation plastique pour représenter le piégeage par les

dislocations.  $K_T$  représente la constante d'équilibre de la réaction de piégeage (supposée instantanée) définie comme :

$$K_T = \exp\left(-\frac{\Delta W_B}{RT}\right), \quad (\text{I.3.12})$$

où  $\Delta W_B$  est l'énergie de piégeage.

De plus, si l'on considère que le taux d'occupation des sites interstitiels est très faible, c'est à dire  $\theta_L \ll 1$ , l'équilibre décrit à l'équation (I.3.11) peut se réécrire :

$$\frac{\theta_T}{1 - \theta_T} = \theta_L K_T. \quad (\text{I.3.13})$$

La concentration d'hydrogène piégé s'écrit alors :

$$C_T = \frac{K_T N_T C_L}{N_L + K_T C_L}. \quad (\text{I.3.14})$$

La conservation de la masse permet d'écrire que la variation par unité de temps de la quantité d'hydrogène dans un volume  $V$  délimité par une surface  $S$ , est égale au flux d'hydrogène passant à travers  $S$  :

$$\frac{\partial}{\partial t} \int (C_T + C_L) dV + \int \vec{j} \cdot \vec{n} = 0. \quad (\text{I.3.15})$$

En utilisant l'équation (I.3.10), l'équation (I.3.15) devient :

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} + \frac{\partial C_T}{\partial t} + \nabla \cdot \left( -D_L \vec{\nabla} C_L - \frac{D_L C_L V_H}{RT} \vec{\nabla} P_H \right) = 0. \quad (\text{I.3.16})$$

Si l'on considère que le nombre de sites de piégeage ne dépend que de la déformation plastique équivalente  $\varepsilon_p$  [60], l'évolution de la concentration d'hydrogène piégé devient :

$$\frac{\partial C_T}{\partial t} = \frac{\partial C_T}{\partial C_L} \frac{\partial C_L}{\partial t} + \theta_T \frac{dN_T}{d\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial t}. \quad (\text{I.3.17})$$

En remplaçant (I.3.14) dans (I.3.17) :

$$\frac{\partial C_T}{\partial t} = \frac{C_T(1 - \theta_T)}{C_L} \frac{\partial C_L}{\partial t} + \theta_T \frac{dN_T}{d\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial t} . \quad (\text{I.3.18})$$

Puis en incorporant (I.3.18) dans (I.3.16) on obtient l'équation de transport de l'hydrogène prenant en compte la diffusion assistée par le gradient de pression hydrostatique et le piégeage dû à la déformation plastique:

$$\frac{C_T(1 - \theta_T) + C_L}{C_L} \frac{\partial C_L}{\partial t} + \nabla \cdot \left( -D_L \vec{\nabla} C_L - \frac{D_L C_L V_H}{RT} \vec{\nabla} P_H \right) + \theta_T \frac{dN_T}{d\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial t} = 0 . \quad (\text{I.3.19})$$

En définissant un coefficient de diffusion « effectif » correspondant à la diffusion apparente de l'hydrogène dans le matériau (qui est d'autant plus faible que  $C_T$  est grand et  $\theta_T$  petit) :

$$D_{eff} = \frac{D_L}{\frac{C_T(1 - \theta_T) + C_L}{C_L}} . \quad (\text{I.3.20})$$

L'équation (I.3.19) devient alors :

$$\frac{D_L}{D_{eff}} \frac{\partial C_L}{\partial t} + \nabla \cdot \left( -D_L \vec{\nabla} C_L - \frac{D_L C_L V_H}{RT} \vec{\nabla} P_H \right) + \theta_T \frac{dN_T}{d\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial t} = 0 . \quad (\text{I.3.21})$$

L'évolution de  $N_T$  avec la déformation plastique a pu être estimée expérimentalement dans quelques études sur du fer pur [61] et de l'acier X80 [3], le dosage de l'hydrogène dans des échantillons déformés plastiquement permettant d'obtenir la concentration de l'hydrogène piégé  $C_T$  en fonction de la déformation plastique.  $\theta_T$  est identifié (équation I.3.13) si l'on connaît le coefficient d'équilibre  $K_T(W_B)$  et  $\theta_L$ ,  $N_T$  est alors déduit par la relation  $C_T = N_T \theta_T$ .

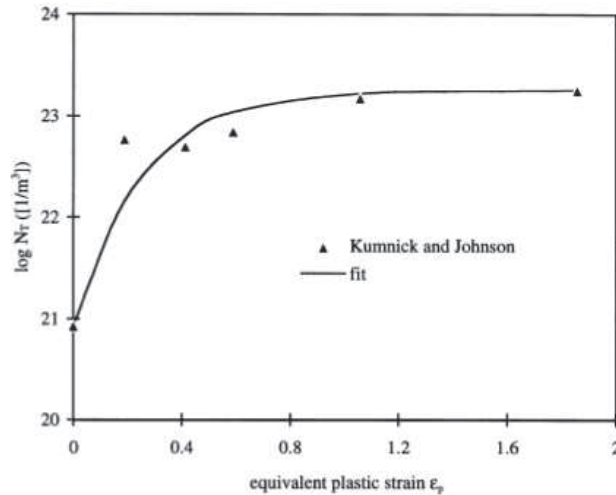
A partir des valeurs expérimentales de Kumnick et Johnson pour le fer pur [61], Sofronis et McMeeking [62] ont proposé une relation reliant le nombre de sites de piégeage  $N_T$  à la déformation plastique avec une énergie de piégeage sur les dislocations déterminée expérimentalement à  $\Delta W_B = -60$  kJ/mol :

$$N_T = 10^{(23,26 - 2,33e^{-5,5\varepsilon_p})} . \quad (\text{I.3.22})$$

Une relation voisine, ré-identifiée sur les travaux de Kumnick et Johnson a été utilisée par Krom et Bakker [6] :

$$N_T = 10^{(23,3-2,33e^{-4,0\varepsilon_p})} . \quad (I.3.23)$$

La Figure I.3.2 présente la courbe analytique obtenue par Krom et Bakker [6], les triangles noirs correspondent aux valeurs expérimentales de Kumnick et Johnson [61].



**Figure I.3.2.** Nombre de sites de piégeage dans du fer pur en fonction de la déformation plastique équivalente [6].

Les travaux de Moro [3] effectués sur un acier X80 ont permis d'évaluer l'évolution de  $N_T$  pour deux valeurs d'énergie de piégeage de l'hydrogène dans le cas du piégeage par une dislocation coin, selon que le piège soit le cœur de dislocation ( $\Delta W_B = - 40$  kJ/mol) ou l'atmosphère de Cottrell autour de la dislocation ( $\Delta W_B = - 20$  kJ/mol). Les énergies de piégeage sont déterminées expérimentalement et sont liées au temps minimal nécessaire à la désorption de 50 % de la quantité d'hydrogène dans le site de piégeage considéré. Ainsi, ce temps minimal est de 30 min pour l'énergie  $\Delta W_B = - 20$  kJ/mol et de 3 h pour l'énergie de piégeage  $\Delta W_B = - 40$  kJ/mol. Les expressions de  $N_T$  correspondantes sont respectivement :

$$N_T = 10^{(25,06-2,06e^{-60,8\varepsilon_p})} \quad (I.3.23)$$

et

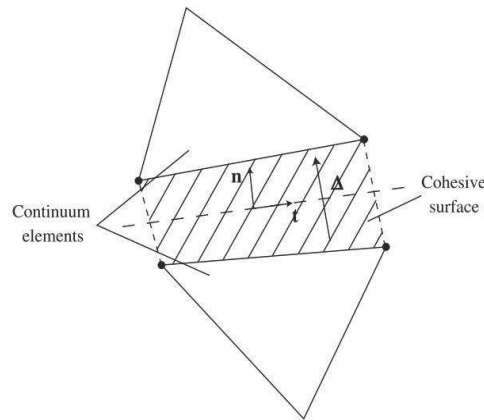
$$N_T = 10^{(27,87-5,876e^{-90,93\varepsilon_p})} \quad (I.3.24)$$

### I.3.c. Modélisation de la rupture

La modélisation de la rupture nécessite des outils permettant d'introduire l'amorçage et la propagation dans le cadre de la mécanique des milieux continus et ce particulièrement dans le

cadre des simulations par éléments finis. Cela peut être notamment réalisé à l'aide du modèle de Gurson pour la rupture ductile [63-65] ou par l'utilisation de modèles à zone cohésives [66-71], notamment très utilisés pour la modélisation des comportements de rupture fragile. L'utilisation de zones cohésives permet de simuler l'amorçage et la propagation de la fissure dans des modèles éléments finis.

Il s'agit d'éléments surfaciques spécifiques [69] insérés entre deux éléments standards et susceptibles de subir des ouvertures tangentielle ou normale (Figure I.3.3). Elles sont régies par une loi de comportement contrainte-ouverture appelée loi de traction-séparation et correspondant à la loi de comportement d'un ressort très rigide endommageable.



**Figure I.3.3.** Zone cohésive, définie par l'ouverture tangentielle selon  $t$  et l'ouverture normale selon  $n$  [69].

La formulation des zones cohésives est effectuée en fonction du problème traité, la loi cohésive pouvant être linéaire, exponentielle, trigonométrique, etc... [67]. Les modèles avec zones cohésives sont particulièrement utilisés pour la modélisation de la fragilisation par l'hydrogène. L'approche cohésive est notamment utilisée par Scheider *et. al* pour simuler la fragilisation par l'hydrogène et la fissuration en mode I, la loi de traction-séparation étant définie par [68] :

$$T = T_0 f(\delta) = T_0 \begin{cases} 2 \left( \frac{\delta}{\delta_1} \right) - \left( \frac{\delta}{\delta_1} \right)^2, & \delta < \delta_1 \\ 1, & \delta_1 < \delta < \delta_2 \\ 2 \left( \frac{\delta - \delta_2}{\delta_0 - \delta_2} \right)^3 - 3 \left( \frac{\delta - \delta_2}{\delta_0 - \delta_2} \right)^2 + 1, & \delta_2 < \delta < \delta_0 \end{cases}, \quad (I.3.25)$$

où :  $\delta_1$  et  $\delta_2$  sont des paramètres de forme, fixés à  $\delta_1 = 0,05\delta_0$  et  $\delta_2 = 0,65\delta_0$ .

Dans cette formulation, la contrainte cohésive est supposée diminuer linéairement quand la concentration en hydrogène augmente dans le matériau [68] :

$$T_{0,hyd} = T_0 (1 - \alpha C_H), \quad (I.3.26)$$



où :  $T_{0,hyd}$  (MPa) contrainte cohésive en présence d'hydrogène,  $\alpha$  paramètre matériau ayant pour dimension [1/concentration] et  $C_H$  la concentration en hydrogène.

Olden *et al.* ont également utilisé la formulation cohésive, la loi de traction séparation employée étant [71] :

$$T(\delta) = \frac{27}{4} T_0 \frac{\delta}{\delta_c} \left(1 - \frac{\delta}{\delta_c}\right)^2, \text{ pour } \delta < \delta_c \text{ sinon } 0. \quad (\text{I.3.27})$$

La contrainte cohésive  $T_{0,hyd}$  en fonction du taux de recouvrement en hydrogène  $\theta$  est alors définie selon une relation polynomiale :

$$\frac{T_{0,hyd}(\theta)}{T_0} = 1 - a\theta + b\theta^2 \quad (\text{I.3.28})$$

où a et b sont des paramètres matériau.

Comme on peut le remarquer, dans ces travaux, la prise en compte de l'hydrogène dans la rupture passe par l'utilisation de paramètres matériau pour simuler la diminution de la contrainte cohésive d'ouverture  $T_0$  en présence d'une concentration en hydrogène. Ce type de démarche nécessite ainsi l'identification de paramètres cohésifs et donc d'avoir un support de données expérimentales à rupture pour pouvoir calibrer le modèle.

## ***1.4. Simulations numériques par éléments finis***

### **1.4.a. Simulations numériques des interactions hydrogène-matériau**

Les simulations numériques traitant des interactions hydrogène-matériau ont fait l'objet de différents travaux [62, 71], et concernent généralement la modélisation d'un essai mécanique en présence d'hydrogène. On distingue ici les simulations réalisées dans le cadre d'un comportement plastique isotrope de celles considérant la plasticité cristalline.

Différents travaux concernent la plasticité confinée (« SSY » pour Small Scale Yielding) en fond de fissure d'une éprouvette de traction entaillée. La géométrie utilisée est présentée à la Figure I.4.1, la structure est un demi-disque entaillé chargé en déplacement avec des conditions de symétrie sur un rayon (en déplacement et en hydrogène). Le déplacement imposé dépend du facteur d'intensité des contraintes que l'on souhaite imposer au voisinage de l'entaille, dont les dimensions sont très inférieures à celles du demi-disque. La concentration en hydrogène, dont la valeur dépend du problème traité, est imposée sur les bords de l'entaille et sur les bords extérieurs du disque.

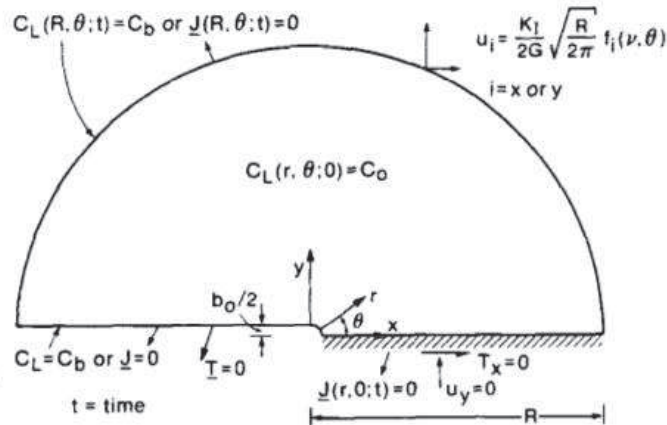


Figure I.4.1. Géométrie "SSY" et conditions aux limites utilisées [62].

Sofronis et McMeeking [62] ont utilisé cette configuration, dans un code éléments finis qu'ils ont développé eux-mêmes, pour étudier la diffusion de l'hydrogène assistée par la pression hydrostatique et la déformation plastique via les phénomènes de piégeage. Pour cela la concentration d'hydrogène imposée est décomposée en une concentration d'hydrogène diffusif  $C_L$  (fonction de la pression hydrostatique) et une concentration d'hydrogène piégé  $C_T$ . La diffusion de  $C_L$  est décrite par l'équation I.3.19. L'évolution du nombre de sites de piégeage  $N_T$  avec la déformation plastique est cependant négligée. La Figure I.4.2 présente les résultats obtenus, la prédominance de l'hydrogène piégé par rapport à l'hydrogène diffusif étant due à la formulation de la concentration d'hydrogène piégé, dépendant directement de la valeur de  $N_T$  définie tel que  $N_T$  décroît quand on s'éloigne de la pointe de la fissure.

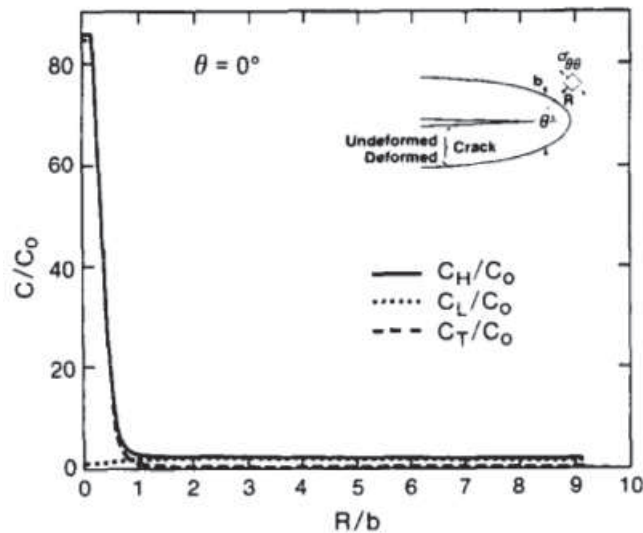


Figure I.4.2. Répartition de l'hydrogène diffusif normalisé  $C_L/C_0$ , de l'hydrogène piégé  $C_T/C_0$  et de l'hydrogène total  $C_H/C_0$  le long de la fissure ( $R = 0$  correspondant à la pointe de l'entaille) [62].

Krom [60] a repris les travaux de Sofronis [62] dans les calculs « SSY » en y incluant la variation de  $N_T$  avec la déformation plastique. Ces calculs sont réalisés dans le code éléments finis MSC.Marc et ont permis d'étudier l'influence de la vitesse de chargement sur les concentrations d'hydrogène diffusif et piégé (Figure I.4.3). Les résultats montrant que l'hydrogène piégé n'est quasiment pas affecté par l'augmentation de la vitesse de déformation alors que la concentration d'hydrogène diffusif tend à diminuer quand la vitesse de déformation augmente.

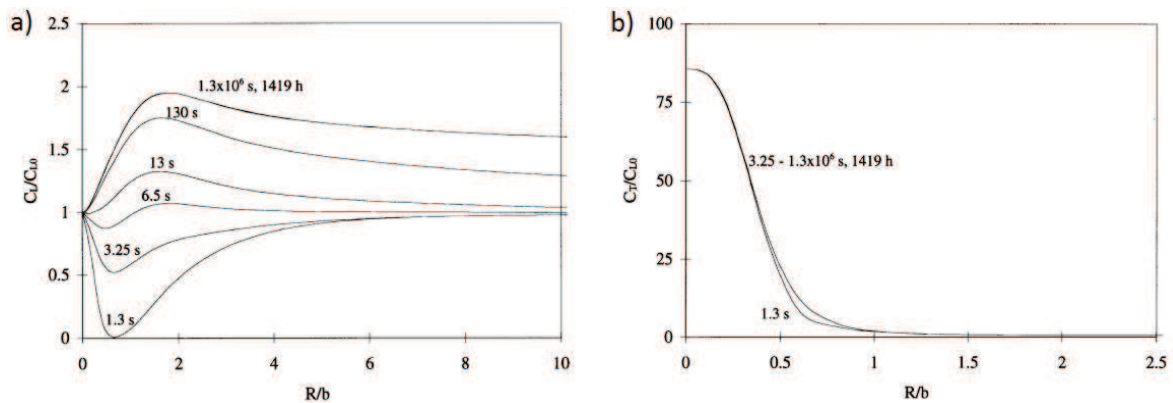


Figure I.4.3. Répartition des concentrations d'hydrogène normalisées pour différentes vitesses de chargement : a) hydrogène diffusif et b) hydrogène piégé [60].

Oh *et al.* ont également utilisé la configuration « SSY » [72] pour valider leur implémentation de la résolution de l'équation I.3.19 dans le code de calcul par éléments finis Abaqus [73]. Le calcul de la répartition des concentrations d'hydrogène diffusif et piégé ont donné des résultats en accord avec la littérature (Figure I.4.4).

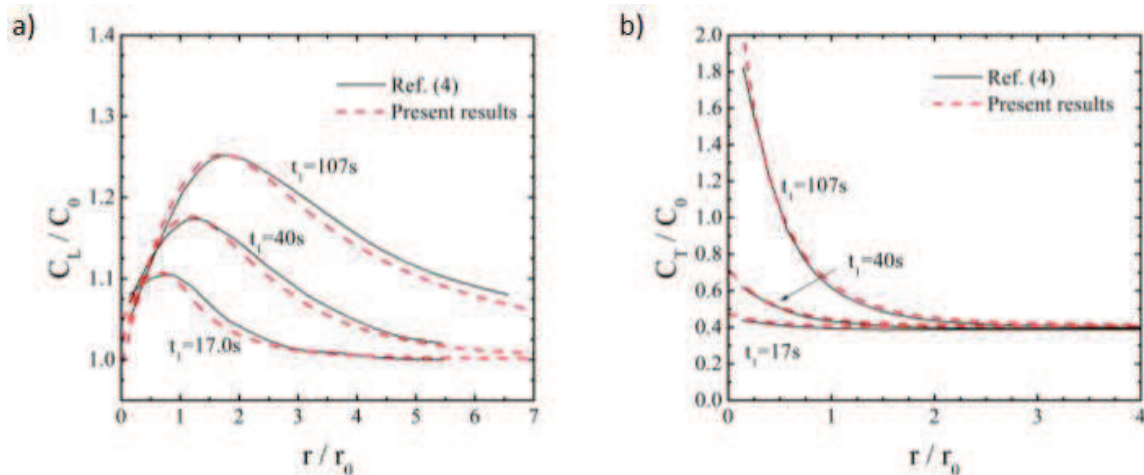
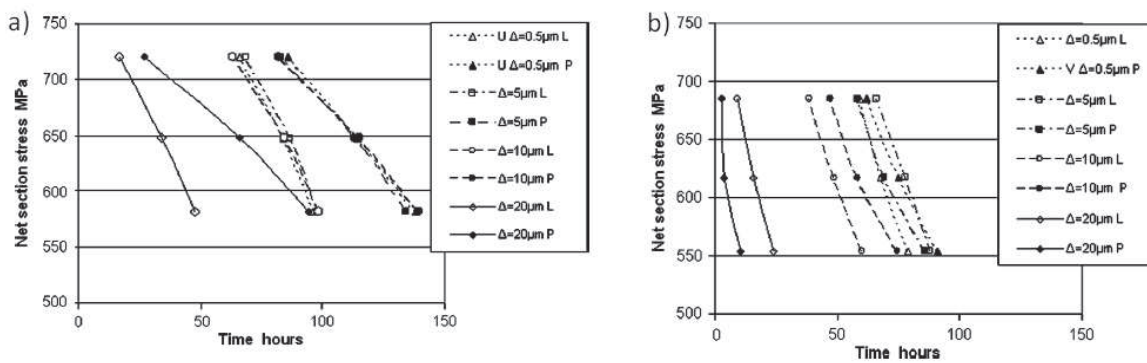


Figure I.4.4. Répartition des concentrations d'hydrogène normalisées pour différentes vitesses de chargement : a) hydrogène diffusif et b) hydrogène piégé [72].

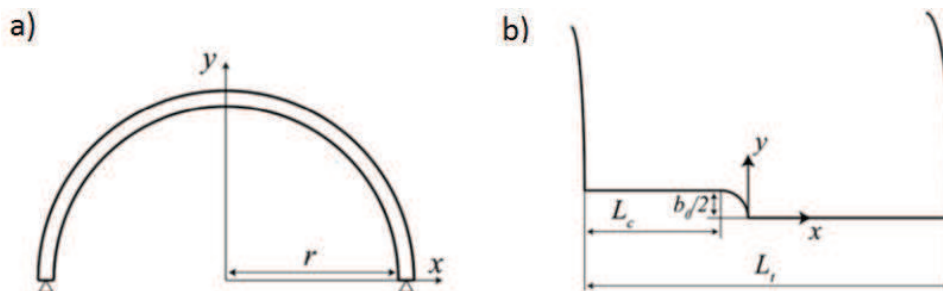
Olden *et al.* [74, 75] ont analysé l'endommagement induit par l'hydrogène dans des éprouvettes entaillé en U et en V (« U-V notch tensile test ») d'acier duplex contenant 25% de chrome. Les simulations sont réalisées dans le code éléments finis Abaqus.

Le comportement du matériau est élastoplastique et l'hydrogène est pris en compte en imposant une concentration de 1 ppm-masse (partie par million massique) dans le volume de l'éprouvette et de 10 ppm-masse sur les bords externes. La diffusion de l'hydrogène dans le matériau est influencée par la pression hydrostatique (équation I.3.10) mais le piégeage n'est pas pris en compte. La prise en compte de la rupture est assurée par l'utilisation de zones cohésives dont la contrainte critique  $\sigma_c(\theta)$  dépend du taux de recouvrement en hydrogène  $\theta$ . La Figure I.4.5 présente les résultats obtenus sur le calcul du temps nécessaire à l'amorçage.



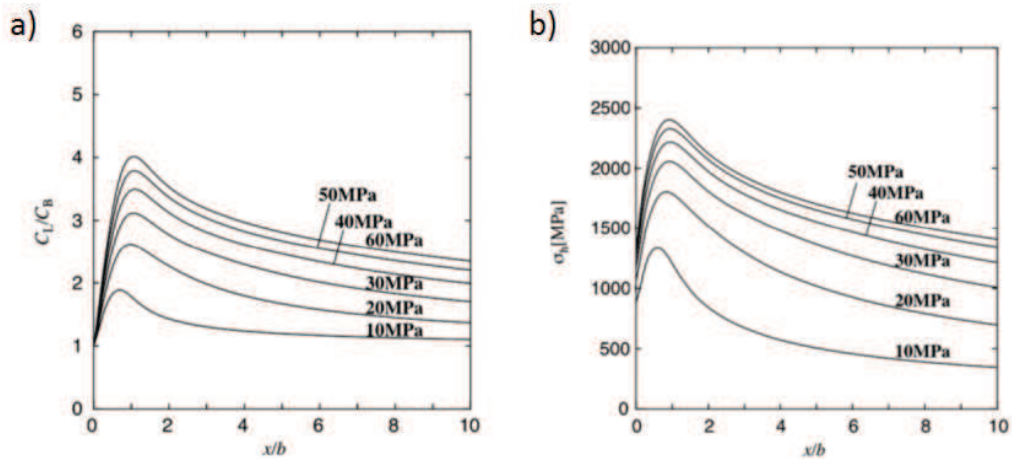
**Figure I.4.5.** Temps à l'initiation de la fissure en fonction du niveau de contrainte pour (P) la loi traction-séparation polynômiale et (L) linéaire pour différentes taille d'éléments, avec a) une éprouvette entaillée en U et b) une éprouvette entaillée en V [74].

Takayama *et al.* [76] ont analysé l'effet de la distribution de l'hydrogène dans un tuyau fissuré soumis à une pression interne (Figure I.4.6). Les conditions aux limites considérées sont soit une concentration en hydrogène constante soit un flux d'hydrogène nul. La diffusion de l'hydrogène est régie par l'équation I.3.19. La résolution du problème est effectuée dans le code éléments finis MSC.Marc.



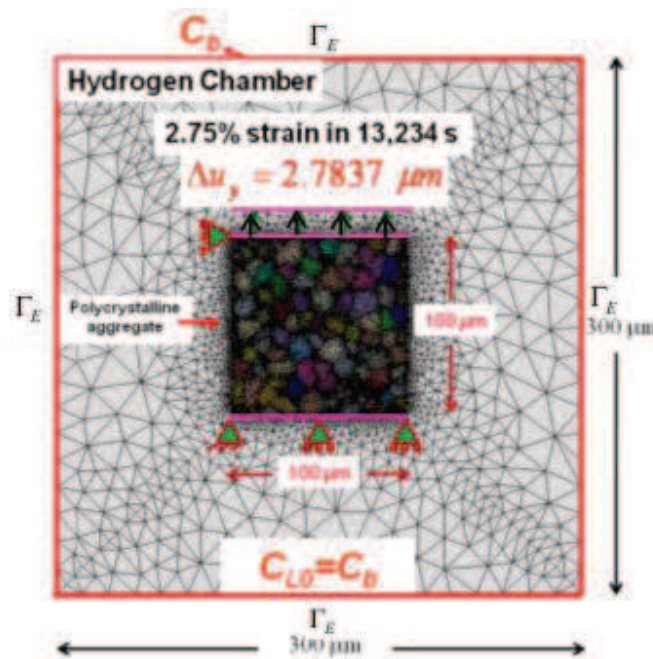
**Figure I.4.6.** a) Géométrie du tube et b) agrandissement de la zone préfissurée [76].

La Figure I.4.7 présente les profils de concentration d'hydrogène diffusif et de contrainte hydrostatique à différentes pressions, avec une concentration constante d'hydrogène imposée sur les bords. Les profils sont similaires car la diffusion de l'hydrogène est pilotée par la pression hydrostatique.



**Figure I.4.7.** Répartition à différentes pressions internes de : a) la concentration d'hydrogène diffusif normalisée et b) la contrainte hydrostatique [76].

Miresmaeili *et al.* [77] ont étudié l'influence du champ mécanique sur la diffusion de l'hydrogène dans une structure polycristalline virtuelle d'acier 316L. Les grains sont représentés à l'aide d'une partition aléatoire de Voronoi 2D. La configuration et les conditions aux limites sont illustrées à la Figure I.4.8.



**Figure I.4.8.** Configuration et conditions aux limites du problème [77].



Le comportement mécanique est assuré à l'aide d'un modèle de plasticité cristalline basé sur la formulation de l'écroutissage de Cailletaud [78] et la diffusion de l'hydrogène est décrite par l'équation I.2.19. Le calcul mécanique est d'abord réalisé dans le code éléments finis Zebulon puis les champs mécaniques sont utilisés pour calculer la diffusion de l'hydrogène dans un code éléments finis développé par les auteurs.

La Figure I.4.9 présente la concentration de l'hydrogène diffusif dans la structure polycristalline en fin de calcul. L'accumulation de l'hydrogène au voisinage des joints de grains s'explique par un important champ de contrainte lié aux concentrations de contrainte et incompatibilités de déformation entre grain.

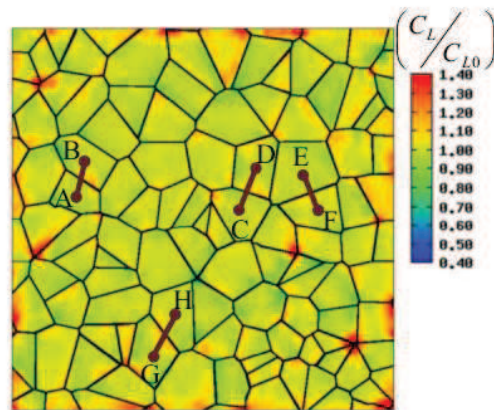
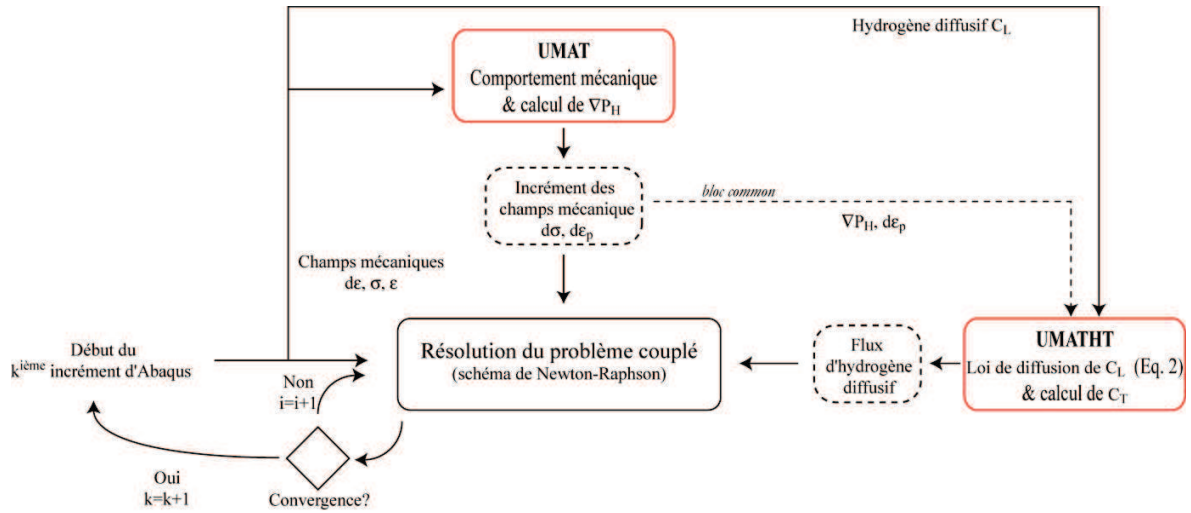


Figure I.4.9. Concentration d'hydrogène diffusif normalisée dans la structure polycristalline [77].

Pouillier *et al.* [79] ont étudié l'influence de la plasticité sur l'amorçage de la fissure en présence d'hydrogène dans un alliage d'aluminium. Pour cela des essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes préchargées en hydrogène. Le champ de déformation est obtenu par corrélation d'image. La microstructure est modélisée à partir d'une cartographie EBSD et validée en confrontant les courbes de tractions mesurées et calculées par simulations éléments finis avec le modèle de plasticité cristalline. Les résultats ont notamment permis d'estimer que la fissuration est due à une contrainte de traction normale au joint de grain de 120 MPa.

Les récents développements au LSPM de Nguyen [38] ont permis de prendre en compte le couplage diffusion-plasticité-piégeage (équation I.3.21) dans le code de calcul Abaqus. La résolution du problème couplé mécanique-diffusion a nécessité le développement de différentes procédures utilisateurs (UMAT, UMATHT,...) et d'outils de post-traitement spécifiques. La stratégie numérique s'inspire des travaux de Oh *et al.* [72].

La procédure UMATHT calcule le flux d'hydrogène diffusif, qui dépend à la fois du piégeage et de la pression hydrostatique (équation (I.3.14)). La procédure UMAT permet de définir le comportement du matériau, et donc d'accéder à l'évolution des champs mécaniques d'intérêt. Le schéma de résolution général et la stratégie de calcul sont présentés à la Figure I.4.10 [38]. Ces outils ont été développés de façon à être modulaires et adaptables, c'est-à-dire que chaque partie peut être modifiée indépendamment et qu'ils peuvent être transposés à différentes configurations, par exemple à une structure macroscopique ou à un agrégat polycristallin.



**Figure I.4.10.** Schéma de résolution du problème couplé mécanique-diffusion dans Abaqus [38].

A l'échelle macroscopique, deux formulations différentes de la relation entre hydrogène diffusif ( $C_L$ ) et hydrogène piégé ( $C_T$ ) ont été considérées. La première relation purement phénoménologique utilise les travaux d'Olden *et al.* [71] et conduit à une relation linéaire (et donc non saturante) entre la population d'hydrogène piégé et la déformation plastique ( $\varepsilon_p$ ) :

$$C_T = (49,0\varepsilon_p + 0,1)C_L . \quad (\text{I.4.1})$$

La deuxième traduit la relation proposée par Oriani [59] (équation I.3.14) :

$$C_T = \frac{N_T(\bar{\varepsilon}_p)K_T C_L}{K_T C_L + N_L} , \quad (\text{I.4.2})$$

avec  $N_T = 23,26 - 2,33e^{-5,5\bar{\varepsilon}_p}$  [60], impliquant une saturation dans la création des sites de piégeage avec la déformation plastique.

La Figure I.4.11 compare les résultats obtenus dans le cas de la simulation d'un U-bend test [38].



Figure I.4.11. Concentration d'hydrogène piégé pour deux relations  $C_L-C_T$  : a) relation saturante et b) relation linéaire [38].

Les outils numériques ont également été étendus et appliqués au cas d'un polycristal obéissant à une loi de plasticité cristalline. La modélisation d'un agrégat polycristallin de l'éprouvette d'essai de pliage en U est alors effectuée en considérant un domaine cubique polycristallin dont les grains ont une distribution aléatoire des orientations, (voir Figure I.4.12), situé sur la face inférieure de l'éprouvette en U (Figure I.4.13). Les conditions de déplacement et de concentration d'hydrogène imposées au cours du temps sont issues des résultats du calcul de l'éprouvette entière de l'essai en U avec un comportement global isotrope.

Les simulations sont réalisées en utilisant la formulation d'Olden *et al.* [71] mais en remplaçant le terme de la déformation plastique  $\epsilon_p$  par celui du glissement cumulé  $\gamma$  :

$$C_T = (49,0\gamma + 0,1)C_L . \tag{I.4.3}$$

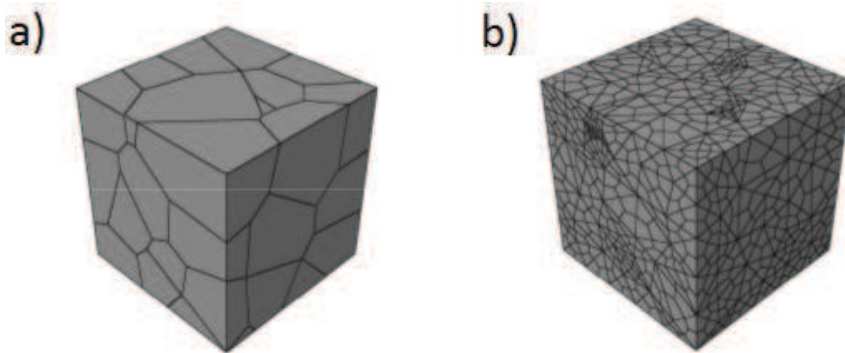


Figure I.4.12. a) Microstructure virtuelle et b) maillage hexaédrique du polycristal étudié [38].



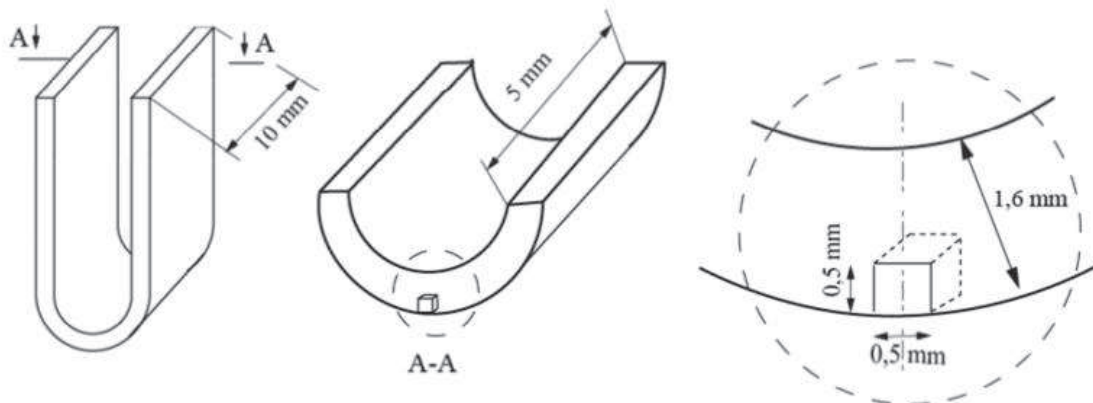


Figure I.4.13. Emplacement de l'agrégat polycristalin dans l'éprouvette pliée en U [38].

La Figure I.4.14 présente la répartition des concentrations normalisées en hydrogène diffusif et piégé dans un agrégat polycristallin de 50 grains. Les résultats obtenus démontrent la flexibilité de la démarche et la robustesse des algorithmes développés.

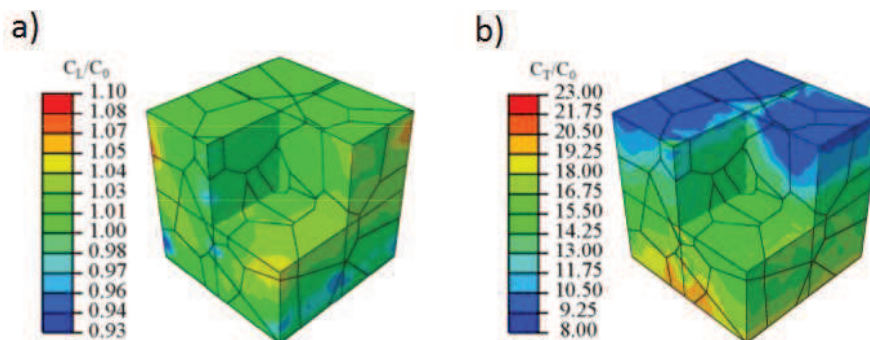
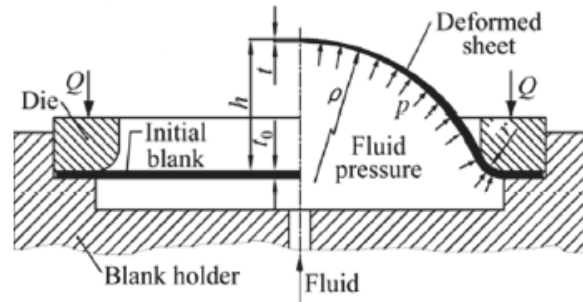


Figure I.4.14. Répartition dans l'agrégat polycristallin des concentrations normalisées d'hydrogène : a) diffusif et b) piégé [38].

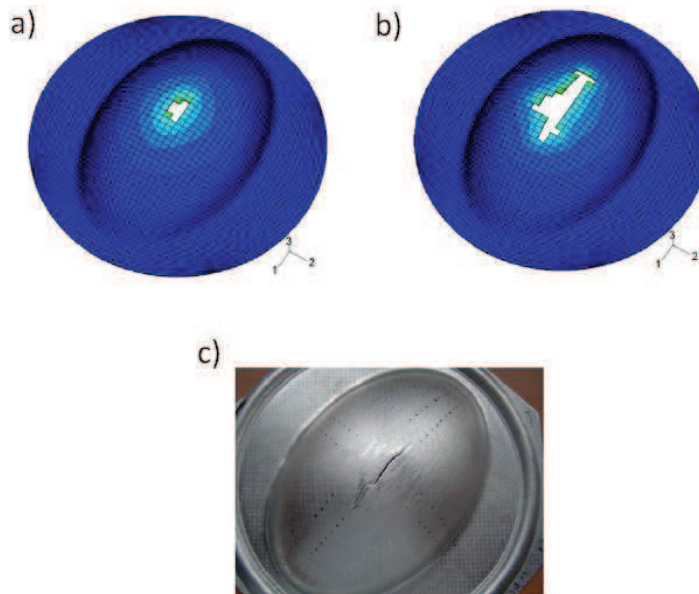
#### I.4.b. Simulations numériques de l'essai de disque

En considérant le dispositif d'essai et les conditions de chargement mécanique, l'essai de disque présente des similitudes avec l'essai de gonflement (« hydraulic bulge test », Figure I.4.15) utilisé en mise en forme des matériaux métalliques, principalement pour déterminer les conditions d'écoulement plastique de tôles minces métalliques dans un état de contraintes équi-biaxiales [80, 81]. Des simulations par éléments finis de l'essai de gonflement sont ainsi disponibles dans la littérature. Les travaux réalisés par Ahmed et Hashmi [83] dans le code ANSYS et plus récemment ceux de Aksenov *et al.* [84] dans un code éléments finis développé par les auteurs ont ainsi permis d'étudier l'influence des conditions de chargement sur la variation d'épaisseur et la hauteur du dôme. Alsos *et al.* [85] ont quant à eux utilisé la simulation numérique par éléments finis (code LS-DYNA) de l'essai de gonflement pour analyser l'instabilité plastique dans une tôle métallique via l'utilisation d'un critère de contrainte. La prise en compte de la rupture ductile dans la simulation de l'essai de gonflement a été assurée par Saanouni [86] en utilisant des

techniques de remaillage, dans le code de calcul commercial Abaqus. Dans l'ensemble des simulations de l'essai de gonflement réalisées, le rayon de courbure de l'outil de maintien était  $r \geq 2$  mm, ceci assurant que les niveaux de contrainte maximales soient localisés au pôle du disque. Et, comme le montre les travaux de Saanouni, la rupture est également localisée au pôle du disque (Figure I.4.16).



**Figure I.4.15.** Représentation schématique de l'essai de gonflement [80] avec :  $p$  la pression,  $t_0$  l'épaisseur initiale,  $t$  l'épaisseur après déformation,  $h$  la flèche du dôme,  $\rho$  le rayon de courbure du dôme,  $Q$  le couple de serrage, et  $r$  le rayon de courbure de l'outil de maintien.



**Figure I.4.16.** Prédiction de la fissuration dans la simulation d'un essai de gonflement : a) à 256 MPa, b) à 260 MPa et c) fissuration expérimentale à 230 MPa [86].

Cependant, il convient de noter que le diamètre de disque utilisé au cours d'un essai de disque est très inférieur (diamètre maximal de  $d = 58$  mm) à celui utilisé dans l'essai de gonflement (diamètre généralement supérieur à 100 mm) [80, 82], et que donc l'effet de la géométrie des outils sur la distribution des champs mécaniques est plus important dans l'essai de disque. De plus, dans l'essai de gonflement, la géométrie des outils de maintien permet la répartition homogène de grandes déformations au voisinage du pôle tandis que dans l'essai de disque, le

faible rayon de courbure de l'outil provoque des concentrations de contraintes localisées dans la zone en vis-à-vis du disque.

Seuls quelques travaux de simulation de l'essai de disque sont disponibles dans la littérature, comme ceux de Beghini [87] avec le code ANSYS et ceux de Moro [3] sous CAST3M. Cependant, ces travaux ne prennent en compte ni la présence de l'hydrogène ni la rupture et ne sont utilisés qu'afin d'évaluer les niveaux de contraintes dans le disque au cours d'un essai. Dans l'ensemble de ces simulations, le rayon de courbure de l'outil de maintien est choisi tel que  $R_c = 1,5$  mm afin de diminuer les sollicitations mécaniques au niveau de l'outil de maintien, ce qui diffère de la norme ISO [28], préconisant un rayon de courbure  $R_c = 0,5$  mm (Figure I.2.8). Ainsi, Moro utilise la simulation de l'essai de disque pour le dimensionnement de disques entaillés (Figure I.4.17), de telle sorte que les champs de contrainte les plus importants soient situés au niveau de l'entaille supérieure.

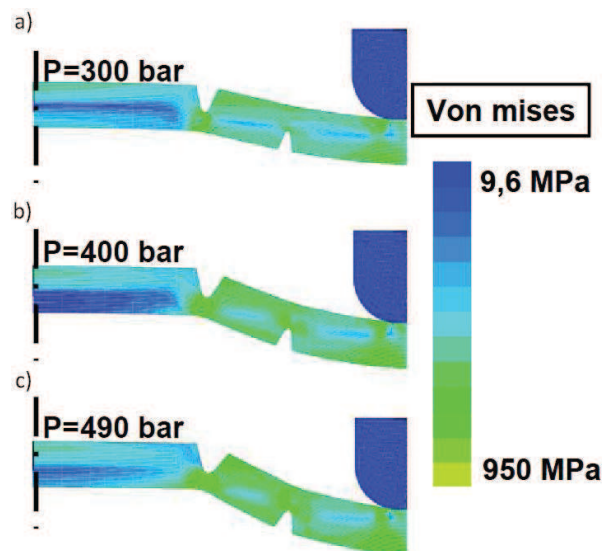


Figure I.4.17. Contrainte de von Mises sur la face inférieure du disque modifié à différentes pressions [3].

Récemment, Charles *et al.* [70] ont étudié la fissuration induite par l'hydrogène dans la simulation de l'essai de disque à rupture en suivant les conditions d'essais de la norme ISO (Figure I.4.18). Les calculs sont réalisés dans le code Abaqus. Le chargement est appliqué sur la face interne du disque en contrainte imposée. La montée en pression est supposée linéaire avec le temps, jusqu'à une pression maximale arbitraire fixée a priori. Le matériau est élastoplastique isotrope.

Le processus d'adsorption-absorption d'hydrogène à la surface du disque est décrite de manière phénoménologique par une loi de Sieverts reliant le taux de recouvrement d'hydrogène sur la surface du disque  $\theta_0 \in [0,1]$ , ratio entre la concentration d'hydrogène absorbé et sa valeur maximale, à la pression de gaz appliquée  $P_{H_2}$ . La diffusion de l'hydrogène dans le matériau suit une loi de Fick classique non couplée :

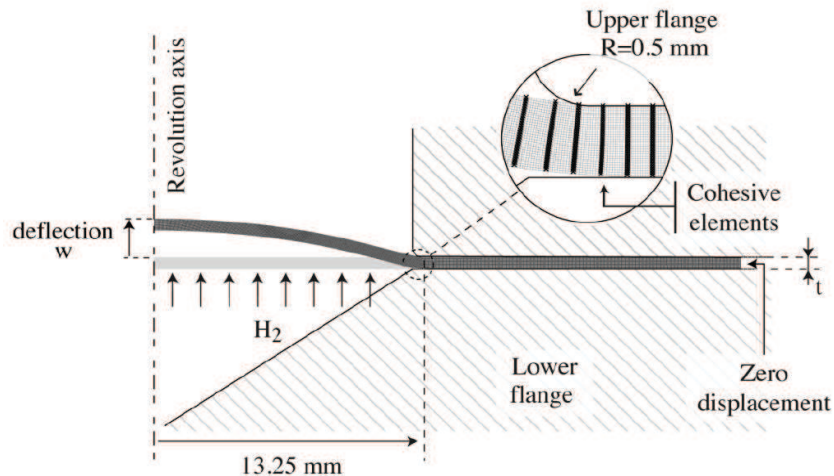
$$\begin{cases} \dot{\theta} - D_H \Delta \theta = 0 \text{ dans le matériau} \\ \text{avec } \theta = \theta_0 \text{ sur la surface interne du disque} \end{cases} \quad (I.4.1)$$

où  $D_H$  est le coefficient de diffusion de l'hydrogène.

Entre les outils et le disque des conditions de non-interpénétration sont imposées et la périphérie du disque est bloquée en déplacement. Le couplage mécanique-diffusion est obtenu via la dépendance à la concentration locale en hydrogène de la contrainte seuil nécessaire à l'ouverture des zones cohésives [53, 69, 70] en utilisant la formulation de Scheider [68] :

$$\sigma_{max} = \sigma_{max}^0 - \Delta_G \theta . \quad (I.4.2)$$

où  $\sigma_{max}^0$  est la valeur de la contrainte maximale en l'absence d'hydrogène,  $\Delta_G$  est un paramètre phénoménologique identifié à l'aide de résultats expérimentaux de rupture.



**Figure I.4.18.** Modélisation de l'essai de disque : configuration, conditions aux limites, maillage et positionnement des zones cohésives dans la zone supposée de rupture [70].

Les résultats numériques obtenus ont été comparés aux résultats expérimentaux (Figure I.4.19), et permettent de reproduire de manière assez satisfaisante l'évolution de la rupture sous hydrogène d'un acier AISI 4135. Les résultats ne sont cependant pas complètement prédictifs compte-tenu de la procédure d'identification des paramètres utilisés.

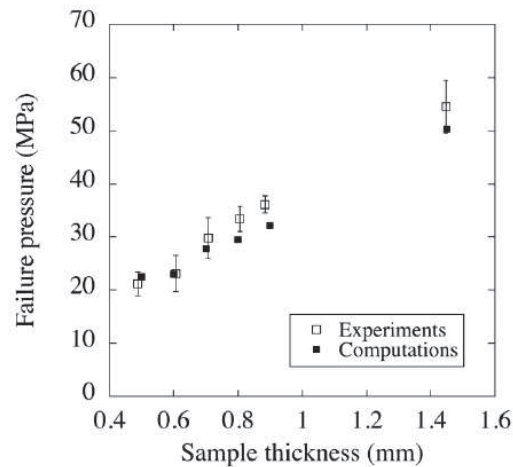


Figure I.4.19. Comparaison des pressions de rupture obtenues par simulation numérique et par essai de disque [70].

### 1.5. Conclusions

La description des principaux mécanismes d'interaction hydrogène-matériau a permis de montrer que les phénomènes de FPH observés à l'échelle macroscopique résultent d'interactions complexes à différentes échelles (depuis celle des défauts du réseau cristallin jusqu'à celle de la pièce de structure) et impliquent différents couplages entre les champs mécaniques et le transport de l'hydrogène dans le matériau. Ainsi, que l'hydrogène soit introduit dans le matériau depuis un environnement liquide (par chargement cathodique) ou gazeux (en exposant le matériau à une atmosphère H<sub>2</sub>), la diffusion apparente de l'hydrogène dans le matériau combine principalement les phénomènes de diffusion de l'hydrogène atomique via les sites interstitiels et de piégeage, réversible ou non, sur les défauts cristallins. La diffusion entre les sites interstitiels est favorisée par les dilatations du réseau cristallin eux-mêmes régies par des gradients de contrainte, de concentration ou de température. Les phénomènes de piégeage sur les dislocations sont favorisés par la plasticité (« piégeage par la déformation plastique ») tandis que la présence d'hydrogène peut favoriser la mobilité des dislocations, ou que l'hydrogène peut être transporté par les dislocations. Différents mécanismes de rupture ont par ailleurs été proposés dans la littérature pour expliquer la FPH, l'hydrogène pouvant notamment favoriser la décohésion, la localisation de la plasticité ou la formation de lacunes.

Dans le cadre de la mécanique des milieux continus et en vue d'applications dans le domaine de la mise en forme, la modélisation du transport d'hydrogène la plus aboutie, utilisable dans des codes de calcul par éléments finis, est basée sur l'équilibre entre l'hydrogène diffusif et l'hydrogène piégé dans le matériau, et conduit à une équation de diffusion couplée tenant compte de l'effet du champ de pression hydrostatique sur la diffusion et du piégeage dû à la déformation plastique [60]. Son application nécessite notamment l'identification de lois d'évolution du piégeage avec la déformation plastique, basée actuellement sur un nombre restreint de résultats expérimentaux de la littérature, délicats à obtenir. La mise en place numérique du couplage mécanique-diffusion nécessite des stratégies spécifiques, qui ne considèrent que rarement [37, 72] la résolution simultanée du problème mécanique et diffusif. Les travaux numériques utilisant



cette approche portent surtout sur des chargements relativement simples de traction uniaxiale, sur éprouvettes lisses ou entaillées. L'approche a été étendue récemment à des essais plus complexes et à structures polycristallines [38], ce qui ouvre la voie à une prise en compte plus précise de la microstructure réelle des matériaux.

La modélisation numérique de la rupture est souvent basée sur l'approche cohésive, a priori attrayante pour la prévision des pressions de rupture dans l'essai de disque [70]. Cependant, son caractère prédictif est fortement limité par différents types de difficultés inhérentes à la méthode : choix a priori d'un chemin de fissuration potentiel, difficultés numériques, notamment du contrôle de convergence des calculs, l'identification des paramètres de la loi traction-séparation des éléments cohésifs, qui dans le cas de rupture assistée par l'hydrogène, impliquent des paramètres supplémentaires dont la signification physique et la validation expérimentale n'est pas évidente.

A l'échelle macroscopique et dans un contexte industriel, l'étude des mécanismes de FPH a mené au développement de plusieurs essais spécifiques dont l'essai mécanique appelé « essai de disque » mis en place pour la sélection des matériaux pouvant travailler en milieu hydrogène [29, 42]. Il s'agit d'un essai normalisé et ayant permis la définition d'un indicateur empirique de sensibilité  $I$  pour classer les matériaux. L'utilisation de cet essai a notamment permis de sélectionner un acier faiblement allié (AISI 4135) pour le stockage de l'hydrogène gazeux en bouteille jusqu'à 30 MPa. Les nouveaux enjeux énergétiques nécessitant des pressions de stockage plus élevées, il convient d'étudier l'influence des hautes pressions d'hydrogène (de l'ordre de 50-60 MPa) sur le comportement de l'acier AISI 4135 et d'évaluer le potentiel de l'essai de disque pour la qualification à haute pression.

Dans ce contexte, compte-tenu de l'état de l'art issu de la revue bibliographique et des travaux antérieurs réalisés au LSPM, le présent travail vise à :

- Analyser expérimentalement et numériquement les paramètres influant la réponse de l'essai de disque pour le matériau considéré et proposer des pistes d'amélioration. Afin d'atteindre la gamme de pression visée, des disques d'épaisseur plus élevée que celle de la norme seront utilisés.
- Appliquer et adapter au cas de l'essai de disque les simulations numériques par éléments finis prenant en compte les interactions hydrogène-plasticité, à l'échelle macroscopique et à l'échelle de la microstructure, en vue de proposer des pistes pour la prévision de l'initiation de la fissuration et des pressions de rupture.

## ***Bibliographie***

[1] P. Jouinot. *Développements de l'essai de disques sous pression, applications à la fragilisation par l'hydrogène d'aciers faiblement alliés*. Thèse de doctorat. Université Paris 6, 1991.

[2] A.M. Brass, J. Chêne et L. Coudreuse. *Fragilisation des aciers par l'hydrogène : mécanismes*. Techniques de l'Ingénieur, 2000. **M176**: p.1-12.

[3] I. Moro. *Fragilisation par l'hydrogène gazeux d'un acier ferrito-perlitique de grade API X80*. Thèse de doctorat. Université Toulouse 3, 2009.

- [4] G.M. Pressouyre and I.M. Bernstein. *A kinetic trapping hydrogen-induced model for cracking*. Acta Metallurgica, 1978. **27**: p. 89-100.
- [5] A.H.M Krom and A.D. Bakker. *Hydrogen trapping models in steel*. Metallurgical and materials transactions B, 2000. **31B**: p.1475-1482.
- [6] T. Otsuka and T. Tanabe. *Hydrogen diffusion and trapping process around MnS precipitates in  $\alpha$ Fe examined by tritium autoradiography*. Journal of Alloys and Compounds, 2007. **446-447**: p.1667-1683.
- [7] M. Garet *et al.* *Hydrogen trapping on non-metallic inclusions in Cr-Mo low alloy steels*. Corrosion Science, 1998. **40(7)**: p. 1073-1086.
- [8] A.M. Brass, J. Chene. *Influence of deformation on the hydrogen behavior in iron and nickel base alloys: a review of experimental data*. Materials Science and Engineering: A, 1998. **242**: p.210-221.
- [9] Y.N. Zouev, I.V. Podgornova, V.V. Sagaragze. *Visualization of tritium distribution by autoradiography technique*. Fusion Engineering and Design, 2000. **49-50**: p.971-976.
- [10] W.C. Luu, J.K. Wu. *Effects of sulfide inclusion on hydrogen transport in steels*. Material Letters, 1995. **24**: p. 175-179.
- [11] G. Itoh, N. Haramura, T. Ihara. *Behavior of hydrogen in an  $Ni_3Al$  compound investigated by means of hydrogen microprint technique*. Intermetallics, 2000. **8**: p.599-603.
- [12] T. Ohmisawa, S. Uchiyama, M. Nagumo. *Detection of hydrogen trap distribution in steel using a microprint technique*. Journal of Alloys and Compounds, 2003. **356-357**: p.290-294.
- [13] M. Kurkela *et al.* Ritchie. *Influence of plastic deformation on hydrogen transport in bainitic  $2\frac{1}{4}$  Cr-1Mo steel*. Scripta Metallurgica, 1982. **16**: p.455-459.
- [14] K.A. Nibur, D.F. Bahr, B.P. Somerday. *Hydrogen effects on dislocation activity in austenitic stainless steel*. Acta Materialia, 2006. **54**: p.2677-2684.
- [15] I.M. Robertson and D. Teter. *Controlled Environment Transmission Electron Microscopy*. Microscopy Research and Technique, 1998. **42**: p.260-269.
- [16] D.P. Abraham and C.J. Altstetter. *Hydrogen-Enhanced Localization of Plasticity in an Austenitic Stainless Steel*. Metallurgical and Materials Transactions A, 1995. **26**: p.2849-2871.
- [17] A. Nagao *et al.* *The role of hydrogen in hydrogen embrittlement fracture of lath martensitic steel*. Acta Materialia, 2012. **60**: p.5182-5189.
- [18] M.R. Louthan Jr. *Hydrogen embrittlement of metals: a primer for the failure analyst*. Journal of failure, analysis and prevention, 2008. **8** : p.289-307.
- [19] M.L. Grossbeck and H.K. Birnbaum. *Low temperature hydrogen embrittlement of niobium II-microscopic observations*. Acta Metallurgica, 1977. **25**: p.135-147.

- [20] H.K. Birnbaum. *Mechanisms of hydrogen related fracture of metals*. Technical report. Office of Naval Research, 1989.
- [21] R.A. Oriani, P.H. Josephic. *Equilibrium aspects of hydrogen-induced cracking of steels*. Acta Metallurgica, 1974. **22**: p.1065-1074.
- [22] Y. Liang, P. Sofronis. *Toward a phenomenological description of hydrogen-induced decohesion at particles/matrix interfaces*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2003. **51**: p.1509-1531.
- [23] C.D. Beachem. *A new model for Hydrogen-Assisted Cracking (Hydrogen “Embrittlement”)*. Metallurgical Transactions, 1972. **3**: p.437-451.
- [24] I.M. Robertson. *The effect of hydrogen on dislocation dynamics*. Engineering Fracture Mechanics, 2001. **68**: p.671-692.
- [25] S.P. Lynch. *Interpreting hydrogen-induced fracture surfaces in terms of deformation processes : A new approach*. Scripta Materialia, 2011. **65**: p.851-854.
- [26] A.M. Brass, J. Chêne et L. Coudreuse. *Fragilisation des aciers par l’hydrogène: étude et prévention*. Techniques de l’Ingénieur, 2000. **M175**: p.1-23.
- [27] C.N. Panagopoulos, E.P. Georgiou, D. Chaliampalias. *Cathodic hydrogen charging of zinc*. Corrosion Science, 2014. **79**: p.16-20.
- [28] C.B. Sonnino and H.C. Tourkakis. *Hydrogen embrittlement of 250 grade maraging steel*. Edition du compte rendu du colloque « L’hydrogène dans les métaux », Valduc, 27-28 septembre 1967, p.47-63.
- [29] ISO 11114-4, 2005. *Transportable gas cylinders – compatibility of cylinder and valve materials with gas contents – Part 4: Test methods for selecting metallic materials resistant to hydrogen embrittlement*
- [30] A.M. Brass, J. Chêne. *Hydrogen uptake in 316L stainless steel: Consequences on the tensile properties*. Corrosion Science, 2006. **48**: p.3222-3242.
- [31] M. Wang, E. Akiyama, K. Tsuzaki. *Effect of hydrogen on the fracture behaviour of high strength steel during slow strain rate test*. Corrosion Science, 2007. **49**: p.4081-4097.
- [32] S.C. Mittal, R.C. Prasad and M.B. Deshmukh. *Effect of hydrogen on fracture of austenitic Fe-Mn-Al steel*. ISIJ International, 1994. **34**(2): p.211-216.
- [33] T. Michler, J. Naumann. *Hydrogen embrittlement of Cr-Mn-N-austenitic stainless steels*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**: p.1485-1492.
- [34] T. Michler, J. Naumann. *Microstructural aspects upon hydrogen environment embrittlement of various bcc steels*. International Journal of Hydrogen Energy, 2010. **35**: p.821–832.



- [35] S.K. Singh and B. Sasmal. *Effect of ferrite grain size on tensile behaviour of a hydrogenated low alloy steel*. ISIJ International, 1999. **39**(4): p.371-379.
- [36] I. Moro *et al.* *Hydrogen embrittlement susceptibility of a high strength steel X80*. Materials Science and Engineering A, 2010. **527**: p.7252-7260.
- [37] T.D. Lee, T. Goldenberg and J.P. Hirth. *Effect of Hydrogen on Fracture of U-Notched Bend Specimens of Quenched and Tempered AISI 4340 Steel*. Metallurgical Transactions A, 1979. **10**: p.439-448.
- [38] T.H. Nguyen. *Développement d'outils numériques pour la prise en compte du couplage hydrogène-plasticité dans un code éléments finis : application à l'essai de pliage en U*. Thèse de doctorat. Université Paris 13, 2014.
- [39] ASTM, *Standard Practice for Making and Using Stress-Corrosion Test Specimen*, in G30-97. 2003.
- [40] Y. Toji *et al.* *Evaluation of Hydrogen Embrittlement for High Strength Steel Sheets*. Materials Science Forum, 2010. **638-642**: p.3537-3542.
- [41] N. Saintier *et al.* *Analyses of hydrogen distribution around fatigue crack on type 304 stainless steel using secondary ion mass spectrometry*. International Journal of Hydrogen Energy, 2011. **80**: p.8630-8640.
- [42] French standard NF E 29-732, 1990. *Gas Containers. Cylinders and Containers for Compressed Hydrogen. Test Method for Selecting Construction Materials*.
- [43] D.H. Zhou, W.X. Zhou and Z.L. Xu. *Hydrogen degradation of 21-6-9 and medium carbon steel by disc pressure test*. Journal of Nuclear Materials, 1986. **141-143**: p.503-507.
- [44] J. P. Fidelle *et al.* *Influence de traitements de surface et de revêtements sur la fragilisation d'aciers à haute résistance par l'hydrogène sous pression – cas de l'acier 35 NiCrMo 16*. Edition spéciale tirée du compte rendu de Interfinish '68, 7ème Congrès International du Traitement de Surface des Métaux, Hanovre. 5-9 Mai 1968.
- [45] P. Jouinot *et al.* *High pressure disk test aided by computer*. Hydrogen and Materials, Beijing 9-13 May 1988, p.278-286.
- [46] L. Briottet, I. Moro, P. Lemoine. *Quantifying the hydrogen embrittlement of pipeline steels for safety considerations*. International Journal of Hydrogen Energy, 2012. **37**: p.17616-17623.
- [47] V. Gantchenko, P. Jouinot. *Mechanical testing of disks under gaseous pressure, Calculation of biaxial mechanical properties applications and interests of the testing method*. Journal of materials science, 2007. **42**: p.9343-9354.
- [48] F. Nürnberger *et al.* *Microstructure transformations in tempering steels during continuous cooling from hot forging temperatures*. Steel research international, 2010. **81**(3): p.224-233.

- [49] J.P. Montagnon. *Les bouteilles de plongée des appareils high tech*. Subaqua, 2006. **148**: p.42-47.
- [50] M. Wang, E. Akiyama, K. Tsuzaki. *Effect of hydrogen and stress concentration on the notch tensile strength of AISI 4135 steel*. Materials Science and engineering A, 2005. **398**: p.37-46.
- [51] D. Firrao *et al.* *Fatigue crack growth in inhomogeneous steel components*. International Journal of Fatigue, 2010. **32**: p.864-869.
- [52] S. Li *et al.* *Evaluation of delayed fracture property of outdoor-exposed high strength AISI 4135 steels*. Corrosion Science, 2010. **52**: p.3198-3204.
- [53] J. Disashi, Y. Charles, M. Gaspérini. *Simulation numérique par éléments finis de « l'essai de disque » utilisé pour caractériser la sensibilité des tôles métalliques à l'hydrogène gazeux*. Rapport de fin de contrat CNRS - Air Liquide N°054618. Université Paris 13.
- [54] S. Serebrinsky, E.A. Carter and M. Ortiz. *A quantum-mechanically informed continuum model of hydrogen embrittlement*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 2004. **52**(10): p.2403-2430.
- [55] J. Plusquellec. *Gaz dans le fer et les aciers*. Techniques de l'Ingénieur, 1987. **M210**: p.1-24.
- [56] D. Delafosse. *9 – Hydrogen effects on the plasticity of face centered cubic (fcc) crystals*, dans *Gaseous Hydrogen Embrittlement of Materials in Energy Technologies Volume 2*, R.P. Gangloff and B.P. Somerday Editors. 2012, Woodhead Publishing, p.247-285.
- [57] J. Toribio. *Role of hydrostatic stress in hydrogen diffusion in pearlitic steel*. Journal of Materials Science, 1993. **28**: p.2289-2298.
- [58] J.C.M Li, R.A. Oriani and L.S. Darken. *The Thermodynamics of Stressed Solids*. Zeitschrift für Physikalische Chemie Neue Folge, 1966. **49**: p.271-290.
- [59] R.A. Oriani. *The diffusion and trapping of hydrogen in steel*. Acta Metallurgica, 1970. **18**: p.147-157.
- [60] A.H.M. Krom, R.W.J. Koers and A. Bakker. *Hydrogen transport near a blunting crack tip*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1999. **47**: p.971–992.
- [61] A.J. Kumnick and H.H. Johnson. *Deep trapping states for hydrogen in deformed iron*. Acta Metallurgica, 1980. **28**(1): p.33-39.
- [62] P. Sofronis and R.M. McMeeking. *Numerical analysis of hydrogen transport near a blunting crack tip*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1989. **37**(3): p.317-350.
- [63] V. Tvergaard. *Influence of voids on shear band instabilities under plane strain conditions*. International Journal of Fracture, 1981. **17**(4): p.389-407.

- [64] S. Hao, W. Brocks. *The Gurson-Tvergaard-Needleman-model for rate and temperature-dependent materials with isotropic and kinematic hardening*. Computational Mechanics, 1997. **20**: p.34-40.
- [65] M. Springmann, M. Kuna. *Identification of material parameters of the Gurson–Tvergaard–Needleman model by combined experimental and numerical techniques*. Computational Materials Science, 2005. **32**: p.544-552.
- [66] X.P. Xu and A. Needleman. Numerical simulations of fast crack growth in brittle solids. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1994. **42**(9): p.1397-1434
- [67] N. Chandra, *et al.* *Some issues in the application of cohesive zone models for metal-ceramic interfaces*. International Journal of Solids and Structures, 2002. **39**: p.2827-2855.
- [68] I. Scheider, M. Pfuff, W. Dietzel. *Simulation of hydrogen assisted stress corrosion cracking using the cohesive model*. Engineering Fracture Mechanics, 2008. **75**: p.4283-4291.
- [69] Y. Charles *et al.* *Modelling the competition between interface debonding and particle fracture using a plastic strain dependent cohesive zone*. Engineering Fracture Mechanics, 2010. **77**: p.705-718.
- [70] Y. Charles *et al.* *Numerical modeling of the Disk Pressure Test up to failure under gaseous hydrogen*. Journal of Materials Processing Technology, 2012. **212**: p.1761-1770.
- [71] V. Olden, A. Alvaro and O.M. Akselsen. *Hydrogen diffusion and hydrogen influenced critical stress intensity in an API X70 pipeline steel welded joint–Experiments and FE simulations*. International Journal of Hydrogen Energy, 2012. **37**: p.11474–11486.
- [72] C.S. Oh, Y.J. Kim, K.B. Yoon. *Coupled analysis of hydrogen transport using Abaqus*. Journal of solid mechanics and Materials engineering, 2010. **4**: p.908-917.
- [73] Abaqus, User Subroutine Reference Manual, paragraph 1.1.19 (2008).
- [74] V. Olden *et al.* *Application of hydrogen influenced cohesive laws in the prediction of hydrogen induced stress cracking in 25% Cr duplex stainless steel*. Engineering Fracture Mechanics, 2008. **75**: p.2333-2351.
- [75] V. Olden *et al.* *Cohesive zone modeling of hydrogen-induced stress cracking in 25% Cr duplex stainless steel*. Scripta Materialia, 2007. **57**: p.615-618.
- [76] K. Takayama *et al.* *Hydrogen diffusion analyses of a cracked steel pipe under internal pressure*. International Journal of Hydrogen Energy, 2011. **36**: p.1037-1045.
- [77] R. Miresmaeili *et al.* *One-way coupled crystal plasticity-hydrogen diffusion simulation on artificial microstructure*. Journal of Computational Science and Technology, 2010. **4**(2): p.105-120.

- [78] G. Cailletaud. *Une approche micromécanique du comportement des polycristaux*. Revue de Physique Appliquée (Paris), 1988. 23(4): p.353-365.
- [79] E. Pouiller *et al.* *A study of intergranular fracture in an aluminium alloy due to hydrogen embrittlement*. International Journal of Plasticity, 2012. **34**: p.139-153.
- [80] L. Lazarescu *et al.* *Characterization of plastic behaviour of sheet metals by hydraulic bulge test*. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2012. **22**: p.275-279.
- [81] M. Atkinson. *Accurate determination of biaxial stress-strain relationships from hydraulic bulging test of sheet metals*. International Journal of Mechanical Sciences, 1997. **39**(7): p.761-769.
- [82] T. Altan *et al.* *Determination of flow stress for sheet metal forming using the viscous pressure bulge (VPB) test*. Journal of Materials Processing Technology, 2004. **146**: p.1-7.
- [83] M. Ahmed and M.S.J Hashmi. *Comparison of free and restrained bulge forming by finite element method simulation*. Journal of Materials Processing Technology, 1997. **63**: p.651-654.
- [84] S.A. Aksenov *et al.* *Determination of optimal gas forming conditions from free bulging tests at constant pressure*. Journal of Materials Processing Technology, 2015. **217**: p.158-164.
- [85] H.S. Alsos *et al.* *Analytical and numerical analysis of sheet metal instability using a stress based criterion*. International Journal of Solids and Structures, 2008. **45**: p.2042-2055.
- [86] K. Saanouni. *On the numerical prediction of the ductile fracture in metal forming*. Engineering Fracture Mechanics, 2008. **75**: p.3545-3559.
- [87] M. Beghini, G. Benamati and L. Bertini. *Hydrogen embrittlement characterization by disk pressure tests: test analysis and application to high chromium martensitic steels*. Journal of Engineering Materials and Technology, 1996. **118**: p.179-185.



## II. Caractérisation du matériau de l'étude

Ce chapitre est consacré à la caractérisation mécanique (essais de traction, mesures de dureté) et microstructurale (par MEB-EBSD et DRX) du matériau de l'étude. Une attention particulière est portée au repérage et à la traçabilité des échantillons prélevés dans le fût de la bouteille considérée.

### II.1. Spécificités de la bouteille de gaz dédiée à l'étude

#### II.1.a. Données fournies par le constructeur

Air Liquide a mis à disposition pour l'étude une bouteille de type H neuve d'origine Dalmine de dimensions : épaisseur  $e_B = 6$  mm, hauteur  $h_B = 1598$  mm, diamètre extérieur  $d_{ext} = 229$  mm et diamètre intérieur  $d_{int} = 217$  mm. La bouteille est issue du lot de livraison n°934/11, lot de bouteilles destinées au stockage à 20 MPa de l'hydrogène gazeux.

Après les étapes de mise en forme (voir paragraphe I.2.b.), la bouteille a subi un traitement thermique d'austénisation à  $865 \pm 30^\circ\text{C}$  pendant 15 minutes, puis une trempe à l'huile et un revenu à  $650 \pm 30^\circ\text{C}$  pendant 30 minutes [1].

Les propriétés mécaniques transmises par le fournisseur sont [1]:

- dureté Brinell :  $HB = 280$  ;
- limite élastique :  $Re = 837$  MPa ;
- résistance à la traction :  $Rm = 935$  MPa ;
- Allongement à rupture = 17,6 %.

Ces propriétés sont conformes aux spécificités exigées pour le stockage de l'hydrogène gazeux à 20 MPa par Air Liquide [2] :

- dureté Brinell comprise entre  $HB = 270$  et  $HB = 290$  ;
- $Re \geq 755$  MPa ;
- $890 \leq Rm \leq 950$  MPa ;
- $Al \geq 14\%$ .

La composition chimique du matériau, fournie par le fabricant, [1] est donnée au Tableau II.1.1. Elle a été déterminée lors de la coulée des billettes utilisées pour la fabrication du lot de bouteilles (coulée n°915435).

Tableau II.1.1. Composition chimique (en % massique) du matériau [1].

C (%)	Mn (%)	Si (%)	S (%)	P (%)	Cr (%)	Mo (%)
0,35	0,71	0,26	0,001	0,013	1,06	0,21

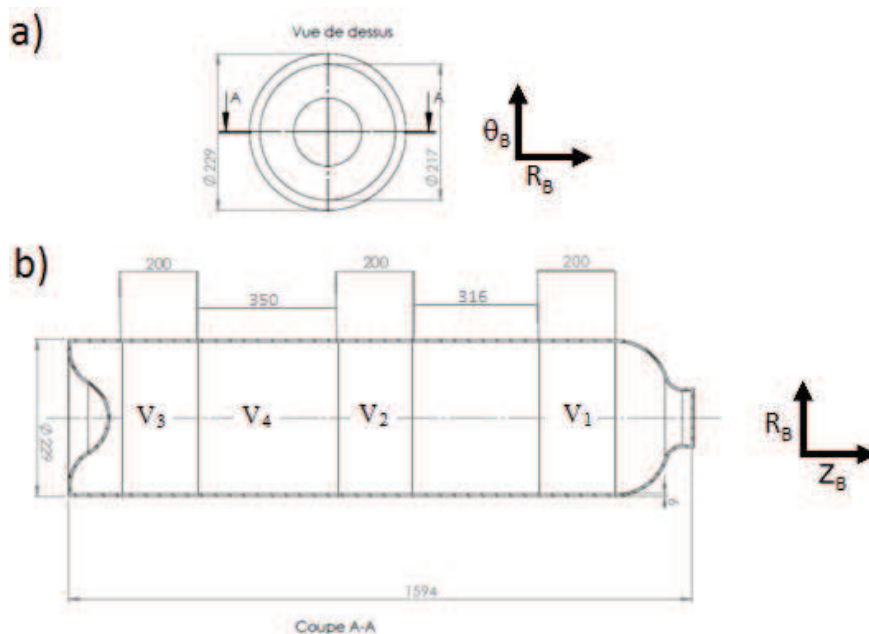
La composition chimique obtenue est tout à fait cohérente avec la composition de l'acier AISI 4135 telle qu'exigée par Air Liquide [2] avec notamment des teneurs en phosphore (P) et en soufre (S) inférieures à 0,015% massique.

## II.1.b. Prélèvement des échantillons

Le prélèvement des disques pour les essais de disque est effectué à mi-épaisseur du fût cylindrique de la bouteille. Afin d'identifier le comportement mécanique des disques, nécessaire pour les simulations par éléments finis, des éprouvettes plates de traction ont également été prélevées à mi-épaisseur prélevées, à proximité des disques.

Une génératrice de la bouteille cylindrique d'axe  $Z_B$  a été choisie arbitrairement comme axe de référence (« axe  $Z_{réf}$  »), afin de repérer sans ambiguïté les échantillons découpés selon différentes génératrices (8 génératrices pour les disques et 8 génératrices pour les éprouvettes de traction).

Quatre viroles (Figure II.1.1) situées respectivement dans le haut ( $V_1$ ), le milieu ( $V_2$ ) et le bas ( $V_3$  et  $V_4$ ), du fût cylindrique ont été découpées au CRPS (Centre de Recherche Paris-Saclay), puis envoyées à l'usineur pour le prélèvement des disques et des éprouvettes de traction.

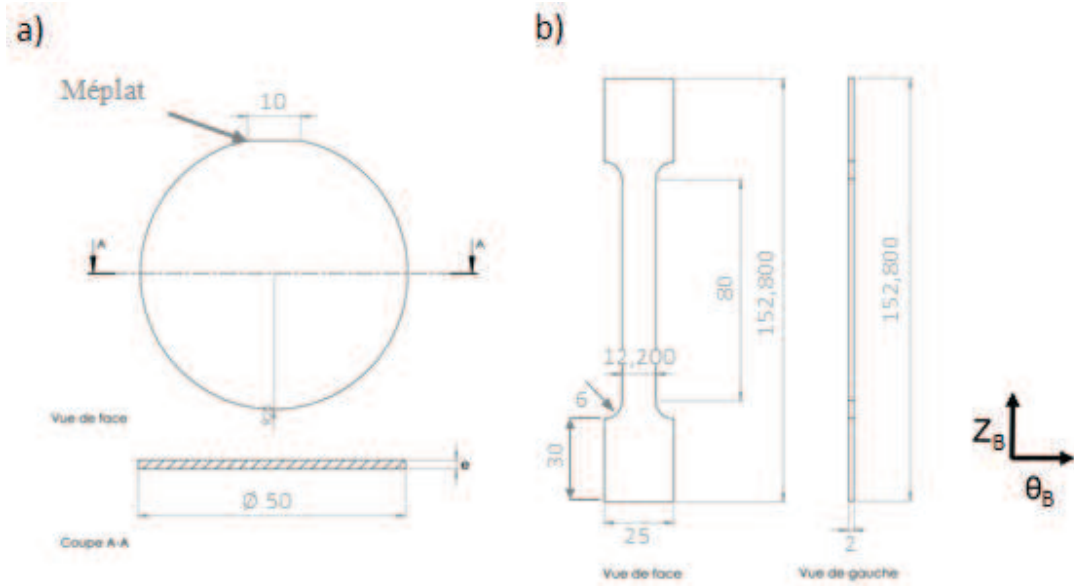


**Figure II.1.1.** Plan de la bouteille avec l'emplacement des 4 viroles découpées et représentation des axes cylindriques : a) vue de dessus et b) vue en coupe. Les dimensions sont en mm.

Les plans de découpe des échantillons sont présentés à la Figure II.1.2. Un méplat perpendiculaire à l'axe  $Z_B$  de la bouteille a été usiné sur les disques de rayon  $r_d = 50$  mm. Le lot d'échantillons est constitué de :

- 3x24 (72) disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  et  $e_3 = 1,50$  mm répartis régulièrement sur les viroles  $V_1$ ,  $V_2$  et  $V_3$  ;
- 10 disques d'épaisseur  $e_2 = 1,20$  mm régulièrement répartis sur la virole  $V_4$  ;
- 3x8 (24) éprouvettes de traction d'épaisseur  $e_T = 2$  mm.

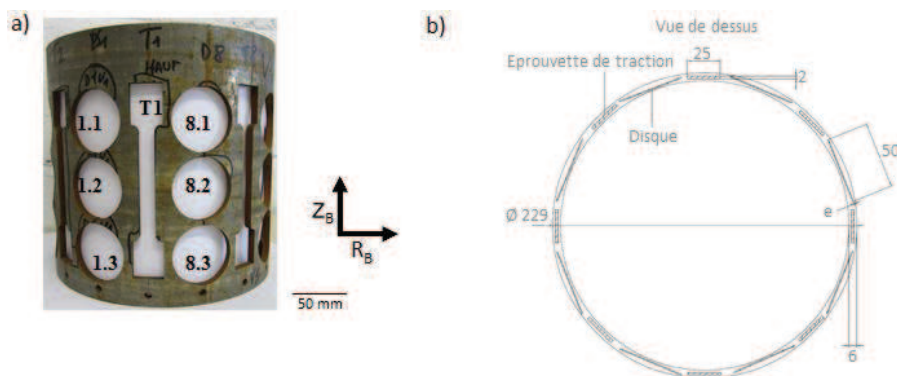




**Figure II.1.2.** Plan de découpe des échantillons : a) un disque et b) une éprouvette de traction. Les dimensions sont en mm.

### II.1.c. Numérotation des échantillons

Les génératrices de prélèvement, angulairement équidistantes, sont repérées et numérotées (Figure II.1.3) de 1 à 8 par gravure, l'axe 1 coïncidant avec l'axe de référence «  $Z_{réf}$  » défini précédemment. Une nomenclature est définie pour désigner les échantillons, sous la forme  $V_i D_j.k$  pour les disques et  $V_i T_j$  pour les éprouvettes de traction, où  $i$  ( $= 1$  à  $4$ ) désigne le numéro de virole,  $j$  la génératrice de prélèvement ( $j = 1$  à  $8$ ) et  $k$  la position verticale du disque ( $k = 1$  à  $4$ , du haut vers le bas de la virole considérée).  $Z_{réf}$  passe par le centre des éprouvettes  $V1T1$ ,  $V2D1.k$  et  $V3D1.k$ . La répartition des échantillons dans l'ensemble de la bouteille est illustré à Figure II.1.4.



**Figure II.1.3.** a) Photo de la virole 1 ( $V_1$ ) vue de face et b) schéma en vue du dessus de l'emplacement des échantillons dans l'épaisseur de la bouteille.

Gorge																
V1	D* 8.1		D7.1		D6.1		D* 5.1		D* 4.1		D3.1		D2.1		D* 1.1	
	D* 8.2	T8	D7.2	T7	D* 6.2	T6	D5.2	T5	D4.2	T4	D* 3.2	T3	D2.2	T2	D* 1.2	
	D8.3		D* 7.3		D* 6.3		D5.3		D4.3		D* 3.3		D* 2.3		D1.3	
Virole intacte																
V2	T8	D8.1		D* 7.1		D* 6.1		D* 5.1		D4.1		D* 3.1		D* 2.1		D1.1
		D* 8.2	T7	D7.2	T6	D6.2	T5	D5.2	T4	D* 4.2	T3	D3.2	T2	D2.2	T1	D* 1.2
		D* 8.3		D7.3		D* 6.3		D5.3		D4.3		D* 3.3		D2.3		D* 1.3
V4	D' 8.1				D' 6.1				D' 4.1				D' 2.1			
	D' 8.2				D' 6.2				D' 4.2				D' 2.2			
	D' 8.3								D' 4.3							
Fond bouteille																
V3	T8	D* 8.1		D* 7.1		D* 6.1		D5.1		D* 4.1		D* 3.1		D2.1		D* 1.1
		D* 8.2	T7	D7.2	T6	D6.2	T5	D* 5.2	T4	D4.2	T3	D3.2	T2	D* 2.2	T1	D* 1.2
		D8.3		D7.3		D* 6.3		D5.3		D4.3		D* 3.3		D2.3		D1.3

D : épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm  
D' : épaisseur  $e_2 = 1,20$  mm  
D\* : épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm

|  
Z<sub>réf</sub>

Figure II.1.4. Emplacement schématique des échantillons dans le fût développé de la bouteille.

## II.2. Caractérisation mécanique

### II.2.a. Profils de microdureté dans l'épaisseur de la bouteille

Les mesures de microdureté sont faites au LSPM sur un microduromètre Duramin, appareil de marque Struers ©. L'échantillon utilisé provient la virole V<sub>3</sub>, seule virole présentant des chutes de découpe disponibles (Figure II.2.1). Les mesures sont faites dans la chute de découpe des disques V3D7.k (k de 1 à 3) dans un plan ( $R_b, \theta_b$ ), ce qui correspond à l'épaisseur de la bouteille. Avant mesure, l'échantillon est soigneusement poli selon le même protocole que pour les observations MEB (voir paragraphe II.3.b.). Le temps d'application de l'indenteur était de 7 secondes pour une charge de 2 N. Des profils sont réalisés selon trois lignes parallèles distantes entre elles de 3 mm illustrées par les traits rouges à la Figure II.2.2. Sur chaque ligne l'espacement entre deux mesures est de 1 mm. La Figure II.2.3 présente une photo de la surface de l'échantillon après indentation.

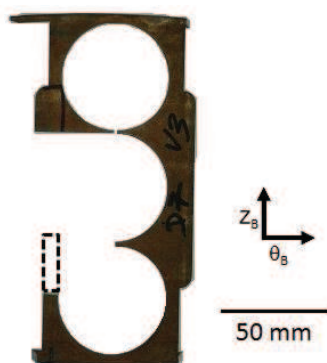
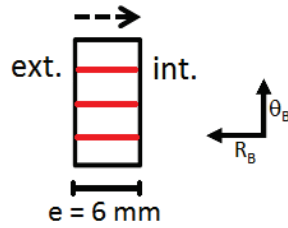
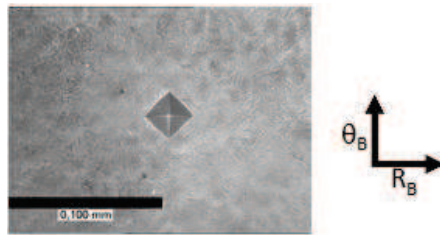


Figure II.2.1. Chute de découpe et localisation (rectangle en pointillés) de l'échantillon prélevé pour les mesures de microdureté.



**Figure II.2.2.** Localisation des profils de microdureté dans l'épaisseur de la bouteille : ext. fait référence à la paroi externe, int. à la paroi interne et e à l'épaisseur de la virole.



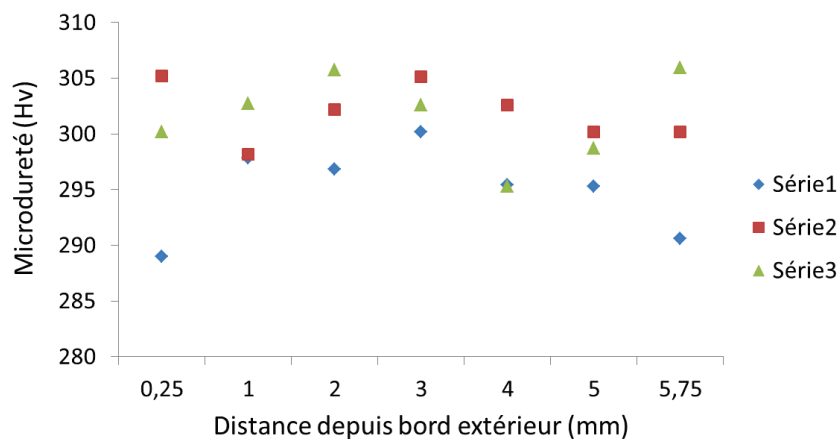
**Figure II.2.3.** Photo de la surface de l'échantillon après indentation.

La Figure II.2.4 montre les résultats de microdureté obtenus. La précision de chaque mesure est estimée à 3 Hv. La valeur moyenne et l'écart-type de chaque profil sont similaires :

- Série 1 :  $Hv = 295,0 \pm 3,9$  ;
- Série 2 :  $Hv = 301,9 \pm 2,6$  ;
- Série 3 :  $Hv = 301,6 \pm 3,8$ .

Ce qui donne, pour l'ensemble des mesures,  $Hv = 299,5 \text{ Hv} \pm 4,7$ .

On remarque que les valeurs sont globalement plus homogènes ( $Hv=300-305$ ) à mi-épaisseur, lieu de prélèvement des disques et des éprouvettes de traction. Les dispersions plus importantes obtenues au voisinage des bords suggèrent une plus grande hétérogénéité du matériau en surface de bouteille.



**Figure II.2.4.** Résultats des mesures de microdureté.

Les valeurs mesurées varient entre  $H_v = 290$  et  $H_v = 305$  soit en dureté Brinell entre  $HB = 276$  et  $HB = 290$ , ce qui est cohérent avec les garanties constructeurs (cf § II.1.a). Selon le Tableau II.2.1 ces valeurs correspondent à celles d'une structure de type bainitique [3].

**Tableau II.2.1.** Type de microstructure en fonction de la dureté Brinell pour une nuance d'acier AISI 4135 [3].

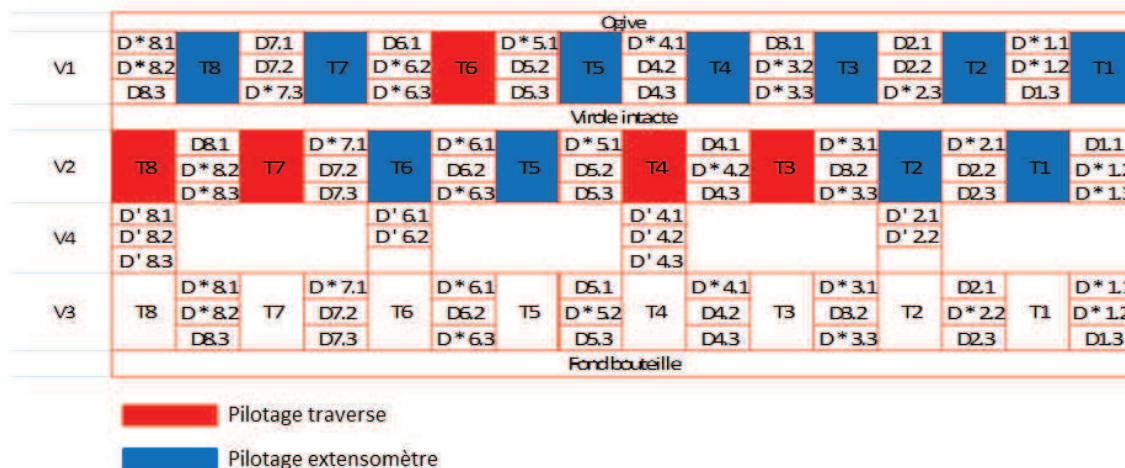
Structure	Dureté HB
Ferrite + perlite grossière	175
Ferrite + perlite fine	260
Bainite moyenne	310
Bainite inférieure	420
Martensite	580

### II.2.b. Essais de traction

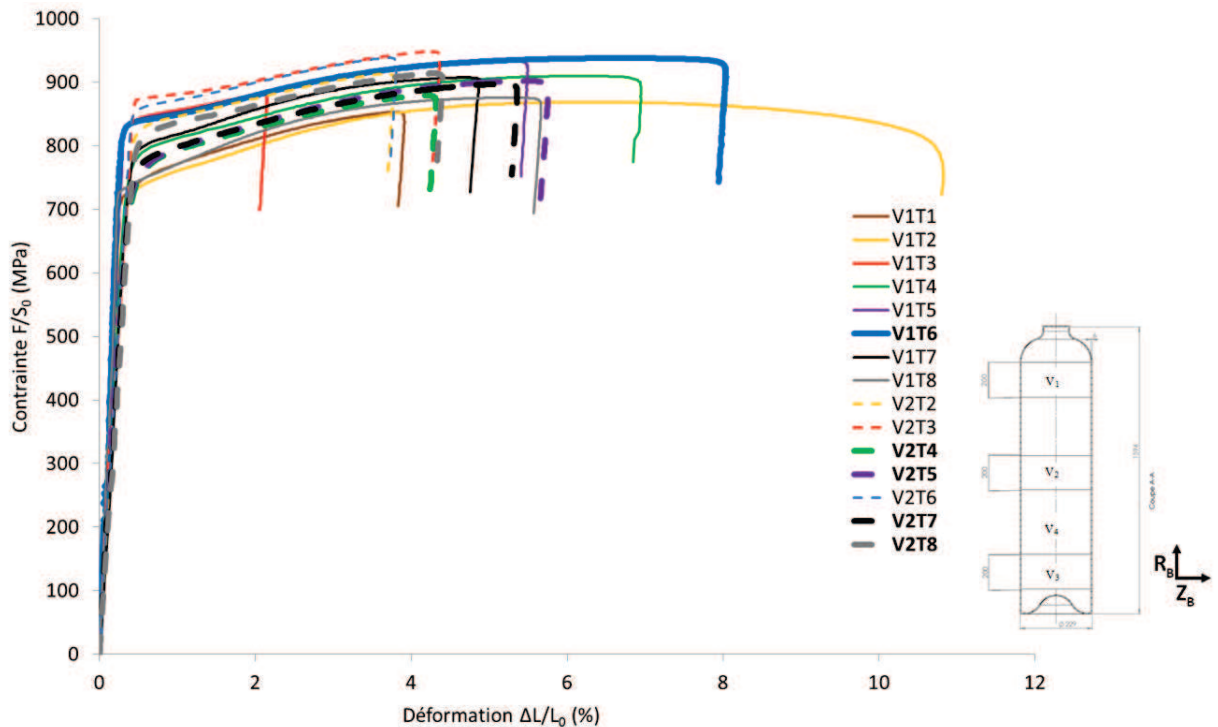
Les essais de traction, sont effectués au LSPM sur une machine de traction électromécanique MTS 20/M de capacité 100kN. Deux modes de pilotage de l'essai ont été utilisés :

- asservissement du déplacement de la traverse sur la vitesse de déformation  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  d'un extensomètre longitudinal de base de mesure de 10 mm ;
- déplacement de la traverse à vitesse de traverse imposée  $v_T = 0,48 \text{ mm/min}$  correspondant à une vitesse de déformation initiale  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ .

Le mode de pilotage utilisé pour chaque essai de traction est indiqué sur la Figure II.2.5. L'ensemble des courbes de traction obtenues est présenté Figure II.2.6 où les courbes en traits pleins correspondent aux essais de traction de la virole  $V_1$  et celles en pointillés aux essais de la virole  $V_2$ , situées respectivement en haut et au milieu du fût.



**Figure II.2.5.** Représentation schématique de l'emplacement des éprouvettes utilisées et indication du type de pilotage.



**Figure II.2.6.** Courbes de traction : en traits pleins pour la virole V<sub>1</sub> ; en pointillés pour la virole V<sub>2</sub> ; les courbes en gras correspondent à un pilotage traverse. Le schéma à droite rappelle la position des viroles dans le fût.

Les courbes de traction présentent une grande dispersion. En considérant l'ensemble des courbes, la valeur moyenne et l'écart-type des caractéristiques mécaniques sont :

- limite d'élasticité conventionnelle à 0,2%  $R_{e_{0,2\%}} = 796 \pm 44$  MPa
- résistance à la traction  $R_m = 903 \pm 27$  MPa
- allongement à rupture (à partir des éprouvettes cassées)  $Al = 8,3 \pm 1,2\%$ .

Les valeurs moyennes de  $R_{e_{0,2\%}}$  et  $R_m$  sont conformes aux spécificités bouteille (cf § II.1.a), contrairement à la valeur moyenne de  $Al$  qui est trouvée inférieure aux spécificités. Il convient de noter cependant que les propriétés mécaniques transmises par le fabricant sont déterminées à partir d'essais de traction sur des éprouvettes cylindriques de type « pleine peau » (ie. de diamètre égal à l'épaisseur de la bouteille  $\sim 6$  mm) et plus courtes (longueur = 10 mm). La géométrie des éprouvettes plates et minces choisie ici pour l'étude, bien que susceptible de modifier le mode de striction avant rupture, visait surtout à disposer du comportement mécanique du matériau constitutif des disques.

Différentes investigations ont été effectuées pour tenter d'établir l'origine de cette dispersion :

- le matériel du LSPM (extensomètre et machine de traction) a été contrôlé et jugé en parfait état de fonctionnement ;
- la dispersion n'est pas liée au mode de pilotage de l'essai : des essais faits avec le même mode (V2T3 et V1T6) sont reproductibles, ainsi que des essais faits sous des modes différents (V2T2 et V2T8)

- la cause de cette dispersion est donc d'origine matériau, ce qui peut être lié aux conditions industrielles de traitement thermique subi par la bouteille.

Les courbes de traction extrêmes pour chaque virole sont :

- virole  $V_1$  : V1T1, V1T2 et V1T8 en limite basse et V1T3, V1T5 et V1T6 en limite haute ;
- virole  $V_2$  : V2T4, V2T5 et V2T7 en limite basse et V2T3 et V2T6 en limite haute.

En représentant ces résultats en fonction de la position des éprouvettes, on peut remarquer pour la virole  $V_1$  que les caractéristiques extrêmes se situent dans les secteurs angulaires voisins, qui ne sont pas les mêmes pour la virole  $V_2$  (Figure II.2.7). Par ailleurs l'évolution des valeurs d'allongement à rupture en fonction de la position de prélèvement des éprouvettes de traction est similaire pour les deux viroles, avec des valeurs légèrement plus élevées pour la virole  $V_1$  (Figure II.2.8).

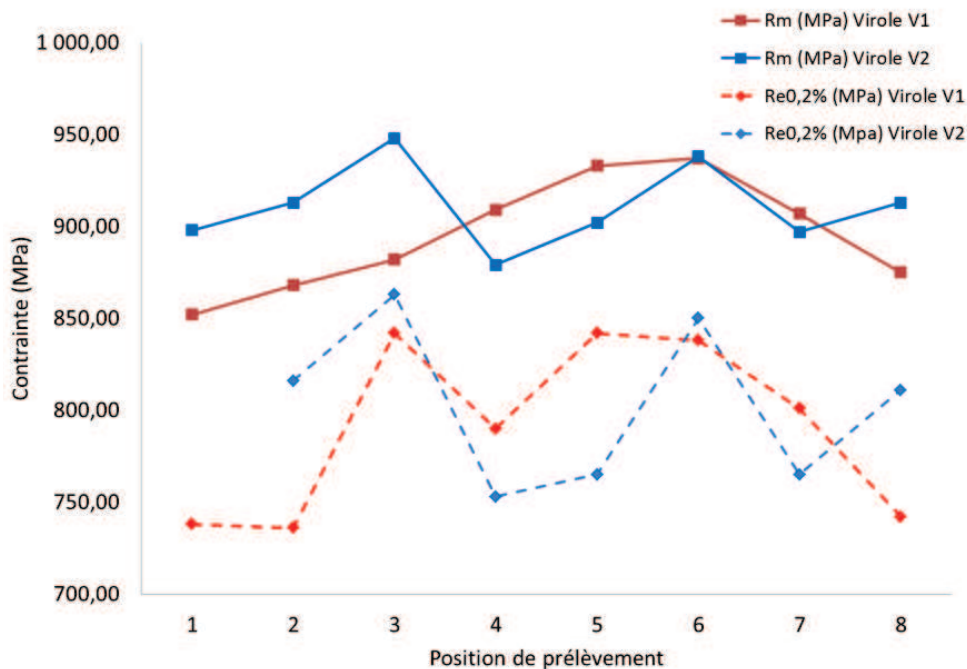
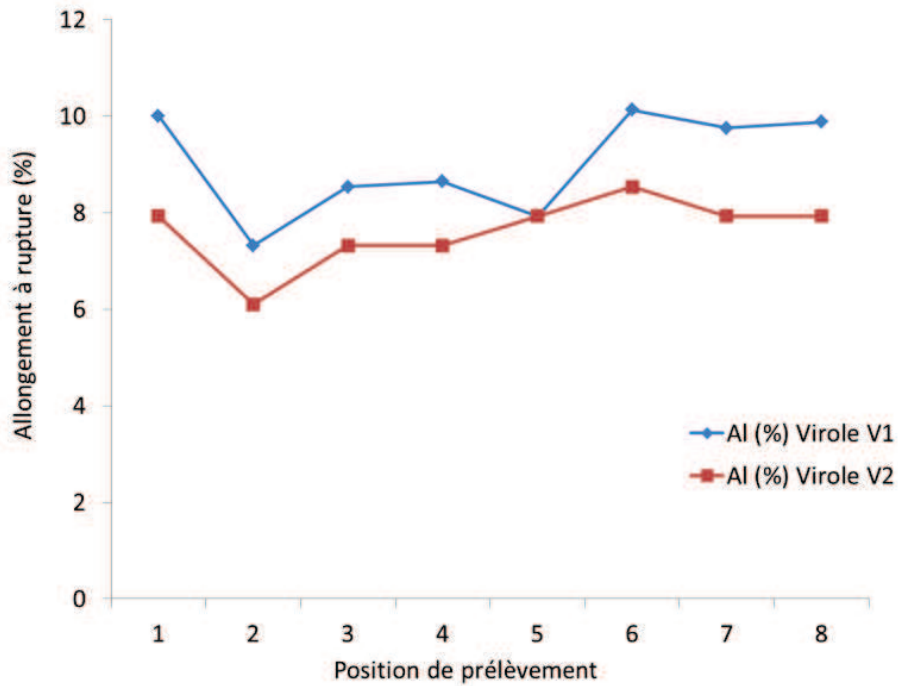
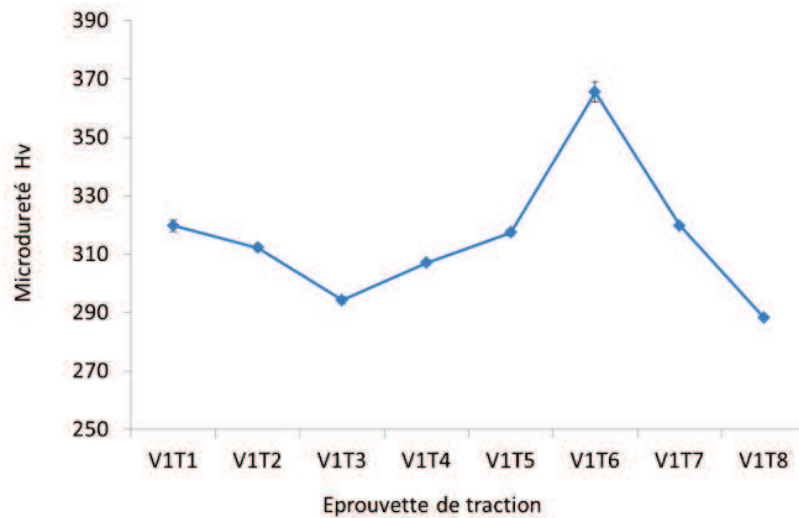


Figure II.2.7. Variations de  $R_e$  et  $R_m$  en fonction de la position de prélèvement.

En raison des fortes dispersions observées dans les courbes de traction, des mesures de microdureté Vickers ont été réalisées dans la tranche, à mi-épaisseur, des têtes des éprouvettes de traction V1Ti. Dans un souci de reproductibilité 4 mesures espacées de 0,1 mm sont effectuées par éprouvette. L'appareillage utilisé est le microduromètre du LSPM décrit dans le paragraphe précédent. La Figure II.2.9 présente les valeurs de microdureté en fonction de la position angulaire des éprouvettes de traction sur les viroles  $V_1$ .



**Figure II.2.8.** Allongement à rupture en fonction de la position angulaire des éprouvettes de traction sur les viroles  $V_1$  et  $V_2$ .



**Figure II.2.9.** Microdureté Vickers des têtes des éprouvettes de traction de la virole  $V_1$ .

Les résultats montrent que pour chaque éprouvette les valeurs de microdureté sont quasiment identiques pour les 4 mesures (écarts maxi  $\sim 1$  Hv) mais qu'il y a une variation notable entre les éprouvettes, la dureté maximale correspondant à l'éprouvette de résistance mécanique la plus élevée.



Il apparait donc que la variabilité des essais de traction est liée à des variations locales de l'état de durcissement du matériau, résultant probablement d'hétérogénéités spatiales de traitement thermomécanique lors des étapes de fabrication de la bouteille.

## ***II.3. Caractérisation microstructurale***

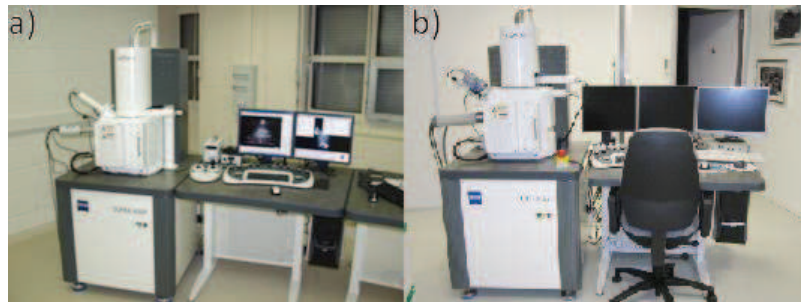
### **II.3.a. Dispositifs de caractérisation microstructurale**

Les observations MEB-EBSD ont été effectuées au LSPM et au CRPS, et les mesures de diffraction X au LSPM.

#### ***i. Microscopie Electronique à Balayage***

Dans un Microscope Electronique à Balayage (MEB), l'échantillon est soumis à un faisceau continu d'électrons issu de la source (soit un filament tungstène soit un Field Emission Gun pour les MEB-FEG). Ces électrons émis, dits primaires peuvent interagir de différentes façons avec l'échantillon permettant ainsi de réaliser plusieurs types analyses.

Les différents MEB utilisés au cours des travaux de thèse sont : au LSPM un MEB-FEG Zeiss Supra 40 VP et au CRPS un MEB-FEG Zeiss Ultra 55 (voir Figure II.3.1). La résolution annoncée pour ces appareils est de l'ordre du nanomètre. Les MEB-FEG disposent d'une meilleure résolution spatiale ( $0,1 \mu\text{m}$ ) que les MEB à filament tungstène (de l'ordre du micromètre).



**Figure II.3.1.** MEB-FEG : a) Supra 40VP utilisé au LSPM et b) Ultra 55 utilisé au CRPS.

## *Imagerie*

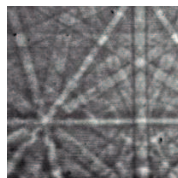
L'imagerie en électrons secondaires (SE) provient du phénomène d'ionisation d'un atome constituant l'échantillon métallique par l'éjection d'un électron dit secondaire provenant de la bande de conduction. Ces électrons sont émis dans les couches superficielles de l'échantillon et permettent d'obtenir une information topographique.

L'interaction du faisceau d'électrons avec l'échantillon produit également des électrons rétrodiffusés (Back Scattered Electron, BSE). Ces électrons sont issus d'une réaction quasi-élastique avec les noyaux des atomes de l'échantillon, ils ont donc une énergie proche de celle du faisceau incident. L'émission BSE est liée au numéro atomique, de ce fait un atome lourd en émettra davantage qu'un atome léger, fournissant ainsi un contraste de phase sur une image obtenue par un détecteur spécifique (QBSD : Quadrant Back Scattered Diffraction). Ils sont également exploités pour la technique EBSD (Electron Back Scattered Diffraction).

## *EBSD*

L'analyse EBSD s'appuie sur la diffraction des électrons rétrodiffusés par les plans cristallins en position de Bragg. Les électrons diffractés forment des cônes de diffraction, chaque famille de plans formant deux cônes de diffraction symétriques séparés d'un angle  $2\theta$ . L'intersection entre les cônes et un écran plan donne des hyperboles et forment les « lignes de Kikuchi » observées en pratique et qui, en raison de la taille de l'écran et des cônes de diffraction, forment des segments quasi-rectilignes (Figure II.3.2). Les angles entre ces lignes ainsi que leur largeur sont spécifiques à une structure cristalline donnée.

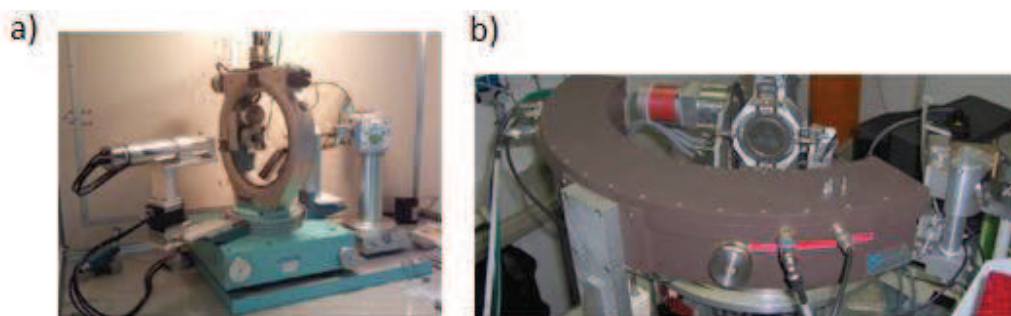
En ayant connaissance de la structure cristalline du matériau étudié, la mesure des angles entre les bandes permet de remonter, après traitement (logiciel OIM), à l'orientation cristallographique par rapport au repère macroscopique de l'échantillon en chaque point de mesure. A l'aide de cartographies d'orientation, de distribution de désorientations, ou de grandeurs associées, les microstructures peuvent être finement analysées (orientation, taille et forme des « grains »,...). Les conditions expérimentales requises pour ce type d'analyse sont une distance de travail de 10 mm (MEB-FEG), un tilt de l'échantillon de  $70^\circ$  et une tension de 20 kV.



**Figure II.3.2.** Exemple de lignes de Kikuchi

## ii. Diffraction des rayons X

Toutes les techniques de diffraction des rayons X utilisent la relation de Bragg :  $2d_{\{hkl\}}\sin\theta = n\lambda$  où  $n$  entier,  $d$  distance inter-réticulaire des plans cristallographiques  $\{hkl\}$ ,  $\lambda$  longueur d'onde des rayons X et  $\theta$  l'angle d'incidence. Deux types d'appareillages ont été utilisés ici, pour mesurer la texture cristallographique d'une part, et pour effectuer des diffractogrammes  $\theta$ - $2\theta$  d'autre part (Figure II.3.3).



**Figure II.3.3.** Goniomètres du LSPM : a) détecteur ponctuel pour la mesure de texture et b) détecteur courbe sur  $120^\circ$  pour la mesure de spectre de diffraction.

### *Textures cristallographiques*

La texture cristallographique est donnée par la distribution des orientations des grains du polycristal par rapport à un repère échantillon, elle est responsable de l'anisotropie des propriétés mécaniques globales. Elle est déterminée à l'aide de figures de pôles  $\{hkl\}$ , obtenues par les variations d'intensités diffractées par les plans  $\{hkl\}$  selon la direction de l'échantillon considérée.

Lors de la mesure, la source monochromatique (raie  $K_{\alpha 1}$  du Cobalt de longueur d'onde  $1,788900 \text{ \AA}$ ) de rayon X et le détecteur sont fixés en position de Bragg pour la diffractions des plans  $\{hkl\}$ , et l'intensité diffractée par l'échantillon est mesurée pour toutes les positions de l'échantillon dans le repère du goniomètre (rotations de tilt et d'azimut)

### *Diffractogramme ( $\theta$ , $2\theta$ )*

La mesure du spectre de diffraction consiste à enregistrer l'intensité diffractée par l'échantillon pour toutes les valeurs possible de l'angle de Bragg. La comparaison des pics du spectre obtenu avec les positions caractéristiques d'éléments connus permet d'affirmer leur présence ou non dans l'échantillon étudié.

### II.3.b. Protocole de préparation des échantillons

Les opérations de découpe nécessaires au prélèvement des échantillons (dans les disques ou dans les chutes de découpe de la bouteille) sont réalisées à l'aide d'une tronçonneuse à métaux de précision Secotom-15 de marque Struers ©.

Ensuite, afin d'éviter des artefacts liés à l'état de surface, la préparation des échantillons comporte d'abord un polissage mécanique du grade 800 au 4000 suivi d'un polissage électrolytique, pour les observations MEB et les mesures de microdureté, dont les conditions opératoires sur un appareil LectroPol-5 sont : temps = 12 s, température = 18 °C, tension = 38 V et flux de l'électrolyte réglé à 20 (calibrage Struers). L'électrolyte utilisé est référencé A2 par la société Struers ©, il s'agit d'un mélange d'éthanol, de 2-butoxyéthanol, d'eau et d'acide perchlorique [4, 5].

Pour les analyses EBSD, la préparation finale consiste en un polissage à la pâte diamantée avec de particules de taille 0,25  $\mu\text{m}$  pendant dix minutes suivi d'un polissage final, réalisé avec une solution de silice colloïdale (type solution OPS de Struers ©) pendant 20 min.

### II.3.c. Texture cristallographique globale du matériau

3 échantillons parallélépipédiques ont été prélevés dans les chutes de découpe des disques V3D7.k pour la mesure de texture par DRX. Le premier échantillon de normale  $Z_B$  et de section 6 mm x 8 mm (indexé Ech-1, Figure II.3.4) ; le second de normale  $\theta_B$  et de section 7 mm x 8 mm (Ech-2, Figure II.3.5) et le troisième de normale  $R_B$  et de section 11 mm x 18 mm (Ech-3, Figure II.3.6).

Les résultats obtenus montrent la présence d'une texture faiblement marquée, avec des niveaux de densités de pôles s'échelonnant entre 1,0 (matériau complètement isotrope) et 1,4 - les matériaux texturés présentant des niveaux beaucoup plus élevés (typiquement jusqu'à 8). Les figures présentent une symétrie orthotrope par rapport aux axes  $Z_B$ ,  $R_B$  et  $\theta_B$  et sont relativement bien cohérentes entre elles.

La Figure II.3.5 est qualitativement compatible avec une rotation de 90° autour de l'axe  $R_B$  de la Figure II.3.4, et avec une rotation de 90° de la Figure II.3.6 autour de l'axe  $Z_B$ , suggérant une texture homogène dans le matériau. Les orientations préférentielles se caractérisent par  $Z_B$  proche de directions  $\langle 110 \rangle$ , avec  $R_B$  et  $\theta_B$  pouvant être proche de  $\langle 100 \rangle$  ou  $\langle 110 \rangle$ .

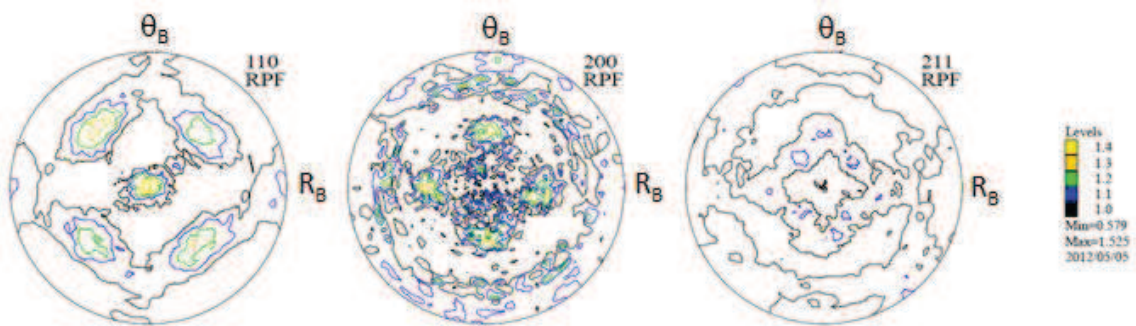


Figure II.3.4. Figures de pôle mesurées sur l'échantillon Ech-1 de normale  $Z_B$ .

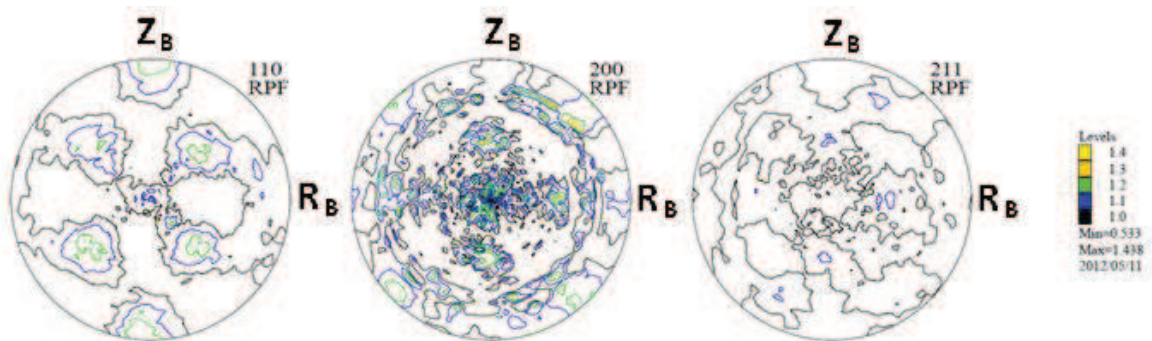


Figure II.3.5. Figures de pôle mesurées sur l'échantillon Ech-2 de normale  $\theta_B$ .

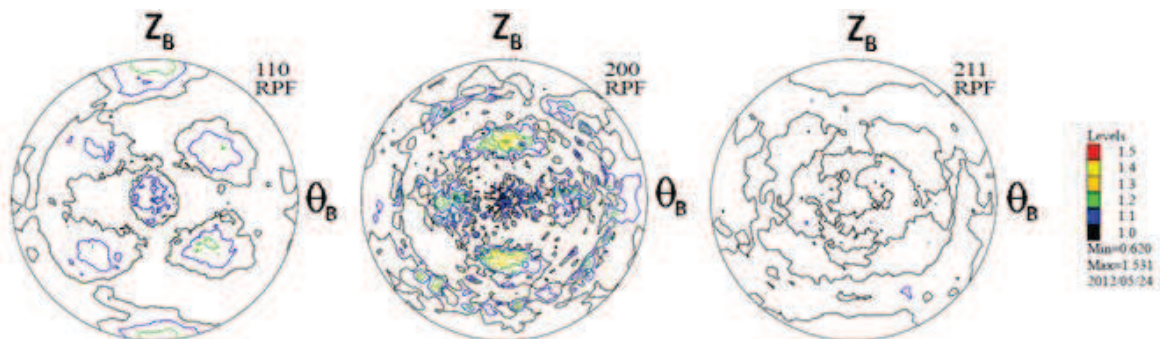
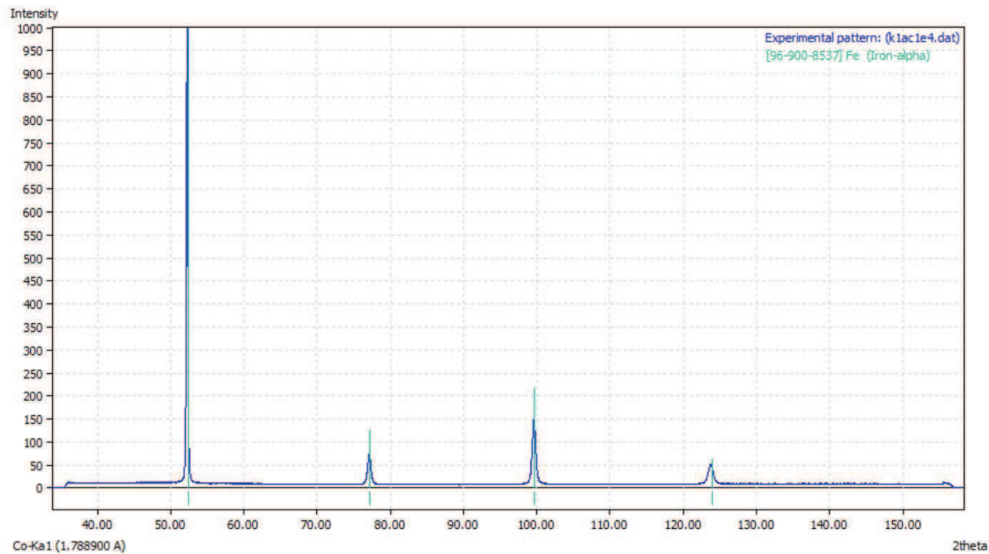


Figure II.3.6. Figures de pôle mesurées sur l'échantillon Ech-3 de normale  $R_B$ .



### II.3.d. Diffractogramme $\theta$ - $2\theta$

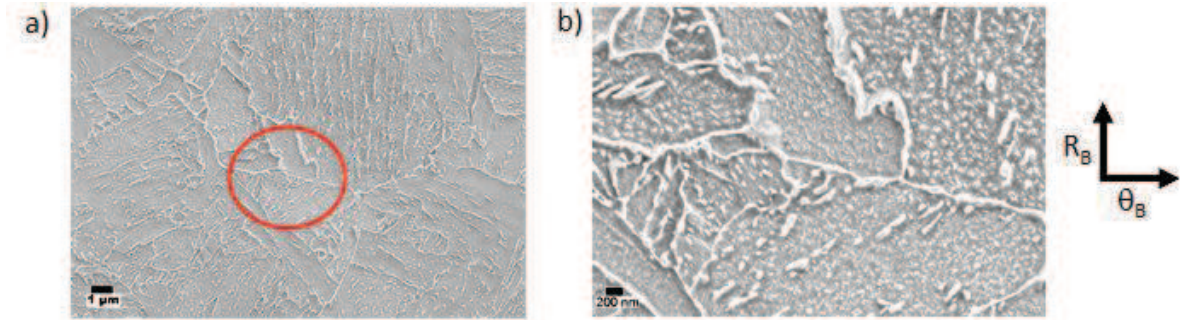
Un spectre de diffraction a été mesuré sur un échantillon de section rectangulaire de 11 mm x 12 mm (Ech-5) et provenant des chutes de découpe des disques V3D7.i. Le diffractogramme ( $\theta$ ,  $2\theta$ ) obtenu met clairement en évidence la présence des pics de la phase  $\alpha$  du fer (Figure II.3.7). En revanche, il n'y a pas eu de détection d'austénite résiduelle, signifiant que sa teneur éventuelle est inférieure à 2% (seuil de détection du détecteur).



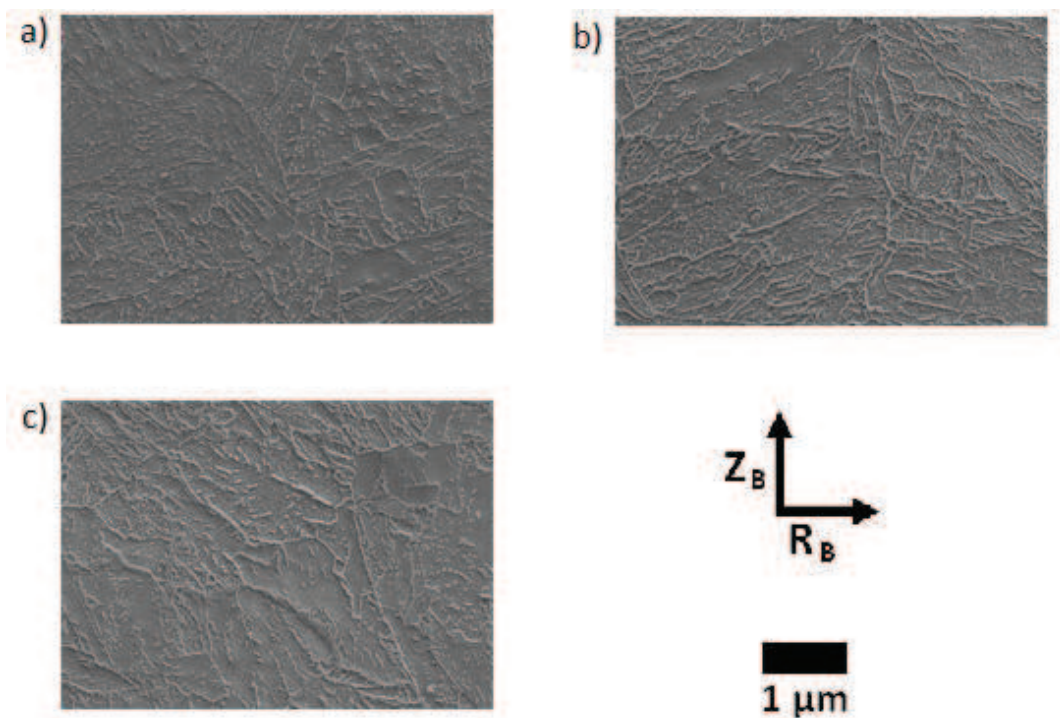
### II.3.e. Caractérisation microstructurale

#### *i. Observations MEB de la microstructure*

Les observations MEB de l'état initial ont été réalisées au LSPM (MEB S-440) et au CRPS (MEB-FEG) sur des échantillons prélevés dans les chutes de découpe des disques V3D7.k. La microstructure présente des grains constitués de lattes avec une dispersion de carbures (Figure II.3.8). On remarque que les grains sont délimités par un film continu de carbures. L'aspect de la microstructure est sensiblement similaire près du bord extérieur, à mi-épaisseur et près du bord intérieur de la virole  $V_3$  (Figure II.3.9).



**Figure II.3.8.** Images MEB-FEG de l'échantillon prélevé dans la virole  $V_3$  : a) aperçu de la microstructure et b) agrandissement de la zone entourée en rouge.



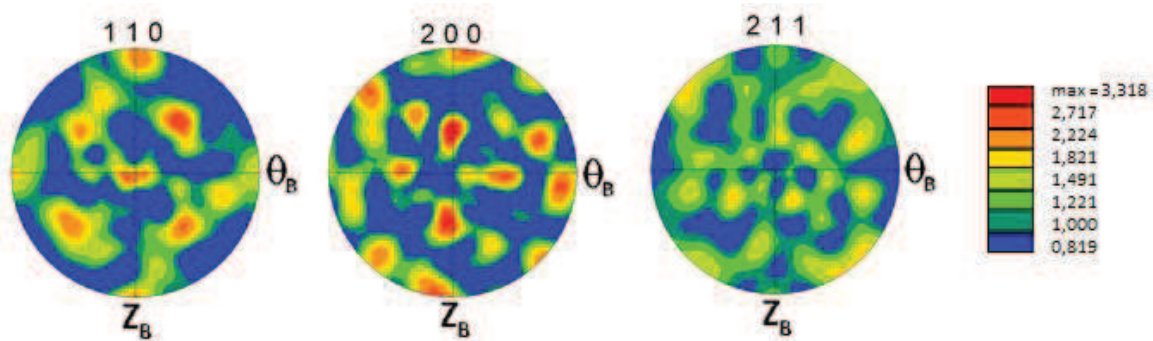
**Figure II.3.9.** Images MEB de la virole  $V_3$  : a) bord extérieur ; b) mi-épaisseur et c) bord intérieur.

## **ii. Analyses EBSD**

Les analyses EBSD sont réalisées sur le MEB-FEG du CRPS sur des échantillons prélevés dans les chutes de découpe des disques V3D7.k selon un plan  $(\theta_B, Z_B)$ . Le pas de mesure choisi étant de  $0,300 \mu\text{m}$ . Le repère  $[\text{RD TD ND}]$  utilisé par le logiciel OIM correspondant au repère macroscopique  $[\theta_B Z_B R_B]$  de l'échantillon. L'indexation est faite avec les paramètres du fer  $\alpha$ . La définition des grains utilisée spécifiait qu'un joint de grain était une désorientation supérieure à  $15^\circ$ .

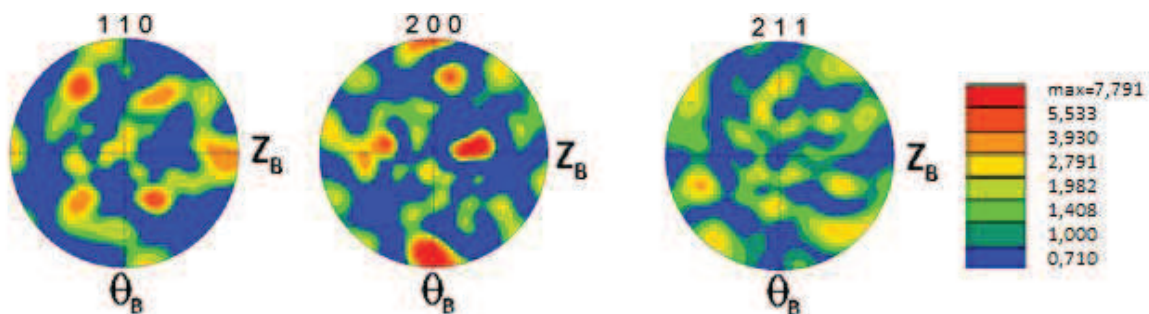


En considérant une section de  $300\ \mu\text{m} \times 300\ \mu\text{m}$ , les figures de pôles obtenues par EBSD ( Figure II.3.10), sont qualitativement similaires avec celles de la texture cristallographique globale obtenue par RX (Figure II.3.6).



**Figure II.3.10.** Figures de pôle obtenues par analyse EBSD sur un échantillon de normale  $R_B$ .

A une échelle plus locale (section de  $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ ), la zone analysée en EBSD peut présenter une texture relativement marquée, comme le montrent les figures de pôles correspondantes (Figure II.3.11), indiquant la présence d’orientations proches de  $Z_B//110$  et  $\theta_B//200$ .



**Figure II.3.11.** Figures de pôle de la zone analysée par EBSD de normale  $R_B$ .

Les cartographies de figures de pôle inverse (IPF) des directions  $R_B$  et  $Z_B$  de la zone analysée sont présentées sur la Figure II.3.12. La microstructure se présente sous forme de lattes d’orientations cristallographiques différentes, de forme allongée dont le rapport de forme approximée à une ellipse  $r/R$  ( $r$  petit axe,  $R$  grand axe) est centré autour de 0,5 (Figure II.3.13). La morphologie des grains évoque une microstructure de type bainitique [6].

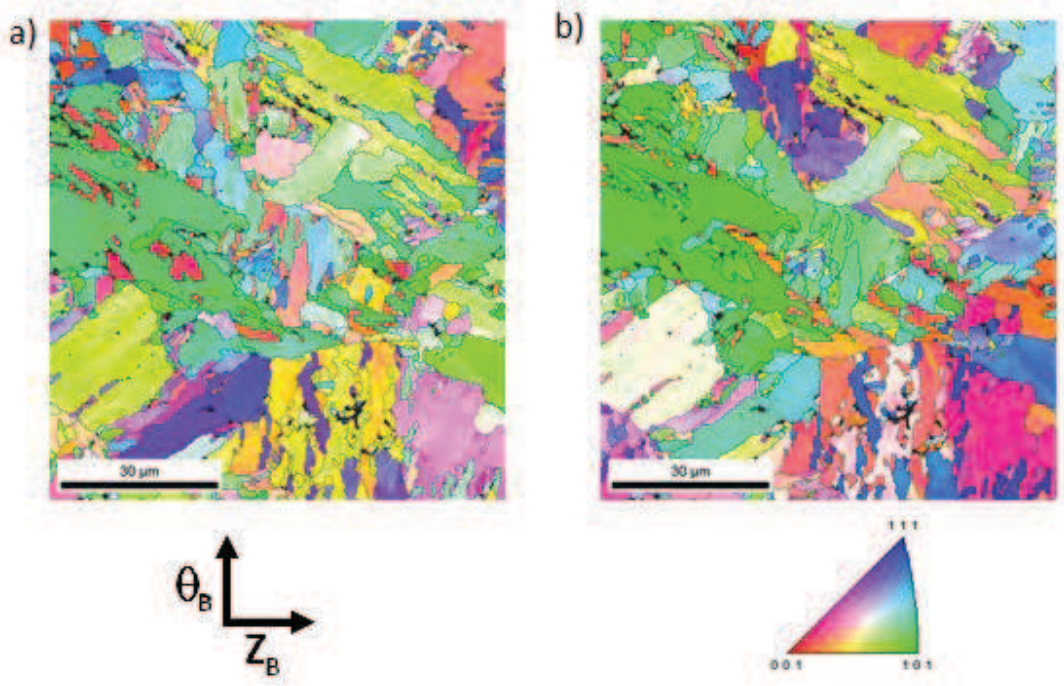


Figure II.3.12. Cartographies IPF de la direction a)  $R_B$  et b)  $Z_B$ .

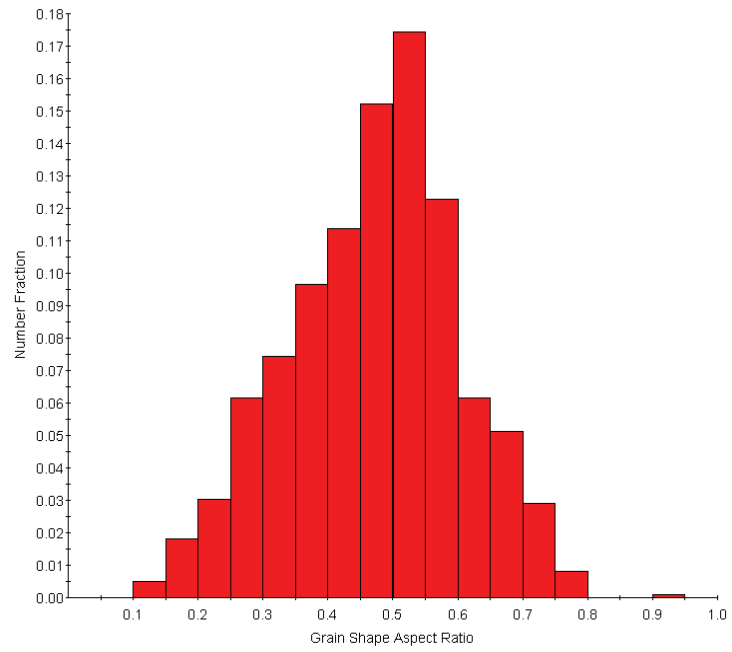


Figure II.3.13. Distribution du facteur de forme des grains.

Le tracé de l'histogramme de désorientations entre points de mesures voisins (Figure II.3.14) montre deux familles de désorientation. La première pour des angles de désorientation inférieurs à 15° (petits angles) et la deuxième pour des angles de désorientation de 15 à 65 ° (grands angles) ce qui est aussi compatible avec une microstructure de type bainitique (Figure II.3.15) [7].

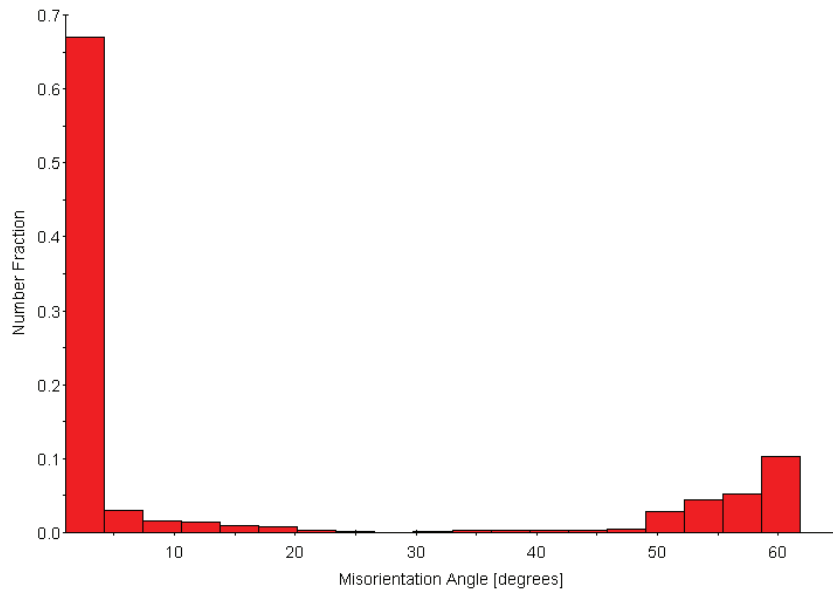


Figure II.3.14. Histogramme des désorientations.

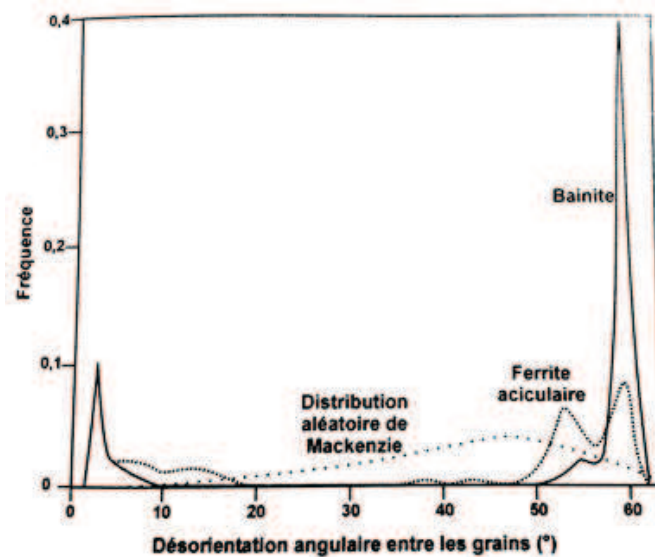
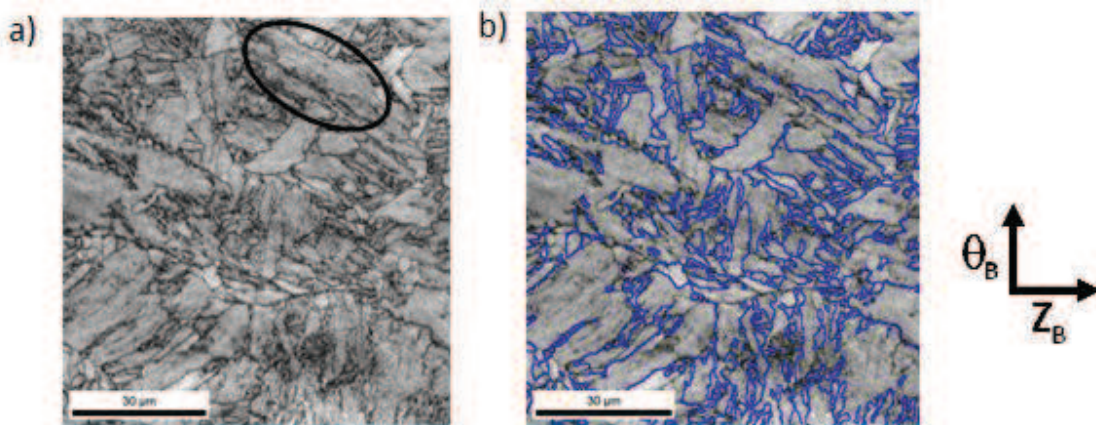


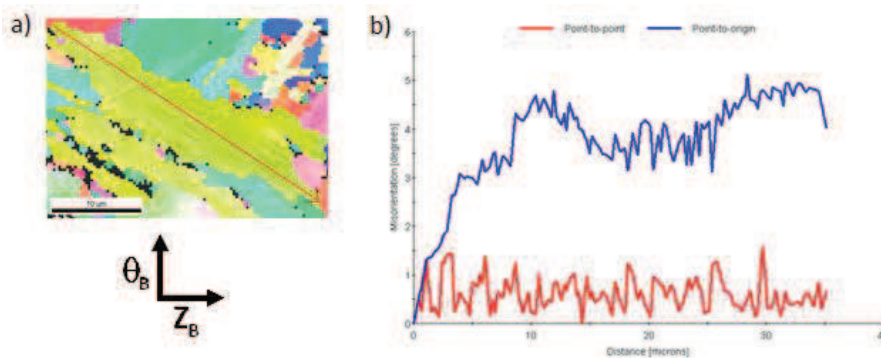
Figure II.3.15. Comparaison des distributions des angles de désorientation pour différentes microstructures : a) bainite et ferrite et b) martensite et bainite [7].

La cartographie du paramètre IQ (Figure II.3.16-a), Image Quality, indique la qualité de diffraction des électrons rétrodiffusés en niveau de gris, liée à la qualité du réseau cristallin (altérée par les défauts, les dislocations, etc.). Dans une telle représentation les zones les plus claires sont de meilleure qualité cristalline. La superposition des cartographies des angles de désorientation et du paramètre IQ (Figure II.3.16-b), montre que les domaines d'indice voisin sont majoritairement séparés par des frontières à grands angles de désorientation (45-65°) qui constituent ainsi la plupart des joints de grains.



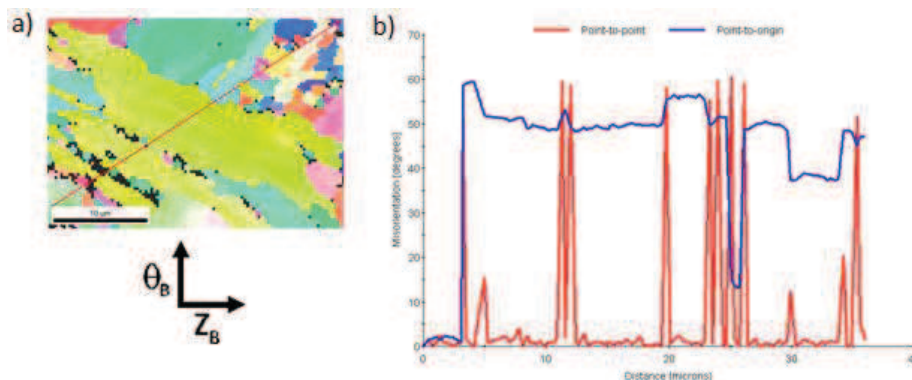
**Figure II.3.16.** Cartographies : a) du paramètre IQ seul et b) superposition de la cartographie des angles de désorientation de 45 à 65° avec la cartographie du paramètre IQ.

Les profils de désorientation tracés à l'intérieur d'un grain (Figure II.3.17) et entre les grains (Figure II.3.18) dans la zone entourée en noir à la Figure II.3.16-a) confirment ces observations. L'intérieur du grain étant constitué de petits angles de désorientation (inférieur à 15°) alors que les angles de désorientation entre les grains sont plus importants (de 15 à 65°).



**Figure II.3.17.** Profil de désorientation d'un grain dans la zone entourée en noir à la Figure II.3.16 : a) le grain considéré et b) le profil obtenu.





**Figure II.3.18.** Profil de désorientation entre les grains dans la zone entourée en noir à la Figure II.3.16 : a) grains considérés et b) profil obtenu.

## II.4. Conclusions

La caractérisation mécanique et microstructurale du matériau de l'étude à l'aide d'échantillons prélevés dans la bouteille neuve destinée au stockage de l'hydrogène à 20 MPa mise à disposition par Air Liquide pour l'étude a permis de mettre en évidence que :

- les propriétés mécaniques mesurées sont globalement conformes aux spécificités attendues. Ainsi les mesures de microdureté Vickers donnent des résultats cohérents avec les données fournies par le constructeur de dureté Brinell et des valeurs typiques pour les aciers bainitiques. La limite d'élasticité et la résistance à la traction se situent également dans des intervalles admissibles. Par contre l'allongement à rupture est plus faible que les données fournies, ce qui peut être lié à la géométrie des éprouvettes utilisées, plates et minces, et prélevées à mi-épaisseur de la paroi du fût de la bouteille, en cohérence avec le prélèvement des disques pour les essais de disques.
- les courbes de traction simple présentent cependant une forte dispersion de niveau de contraintes entre les éprouvettes, qualitativement cohérente avec les variations de dureté constatées selon le lieu de prélèvement des éprouvettes, ce qui suggère des hétérogénéités spatiales d'histoire thermomécanique du matériau selon la zone considérée de la bouteille. Un soin particulier a de ce fait été apporté au repérage et à la traçabilité des échantillons (éprouvettes de traction et disques) en vue de minimiser l'effet de cette variabilité de propriétés mécaniques dans la suite du travail.
- la texture cristallographique globale mesurée par diffraction X est faiblement marquée, suggérant a priori une faible anisotropie de comportement plastique. Par ailleurs il n'a pas été mis en évidence de présence d'austénite résiduelle (teneur maximale inférieure à 2 % correspondant au seuil de détection de l'appareillage).
- A l'échelle des observations MEB, la microstructure apparaît globalement morphologiquement homogène dans l'épaisseur de la bouteille dans la zone analysée (virole V<sub>3</sub>, dans la partie inférieure du fût). La microstructure se présente sous forme de grains de fer  $\alpha$  constitué de lattes, avec une présence de carbures dispersés entre les lattes et un film continu de carbures entre les grains.

Les analyses EBSD montrent que la morphologie de grains et les distributions de désorientation sont typiques de la bainite [6, 7], ce qui est compatible avec les données disponibles sur le traitement thermique subi par la bouteille, et corrobore les résultats de microdureté.

### ***Bibliographie***

- [1] Acceptance Certificate (EN 10204 3.2/ISO 10204 3.2). Tenaris Dalmine, December 2011.
- [2] Rapport d'essais n° 92/FG 4.18 – 16 Mars 1992.
- [3] G. Murry. *Les aciers pour traitement thermique*. Le courrier technique de l'OTUA n°9, 2004.
- [4] Fiche de sécurité ELECTROLYTE A2-I – F (M1211010 – 2009-07-28) – Struers.
- [5] Fiche de sécurité ELECTROLYTE A2-II – F (M1211010 – 2009-07-28) – Struers.
- [6] M. Libert. *Etude expérimentale et numérique de l'effet des mécanismes de plasticité sur la rupture fragile par clivage dans les aciers faiblement alliés*. Thèse de doctorat. Ecole centrale Paris, 2007.
- [7] M. Durand-Charre. *La transformation bainitique*. Extrait du livre « La microstructure des aciers et des fontes : Genèse et interprétations ». edp Sciences 2012, p. 233-250.

### III. Essais de disque

Ce chapitre porte sur l'analyse expérimentale de l'essai de disque. Dans un premier temps le protocole d'essai est présenté avec la configuration du banc d'essai, le plan d'expérience défini et le contrôle de la qualité des disques avant essais. Dans le plan d'expérience défini, deux types d'essais sont établis, d'abord des essais de disque à rupture sous  $H_2$  et sous He pour étudier l'influence des paramètres expérimentaux tels que : l'épaisseur et l'état de surface des disques. Puis des essais de disque interrompus sont prévus en vue d'obtenir des disques déformés mais non rompus.

Deuxièmement les résultats des essais de disque à rupture sont présentés. Deux types de mesures expérimentales sont accessibles : la pression de rupture et les courbes flèche pression. Les pressions de rupture obtenues permettent de calculer l'indice de fragilisation  $I$  pour les différentes épaisseurs de disque considérées. Les courbes flèche-pression obtenues sont par la suite utilisées pour définir les pressions d'arrêt d'essais de disques interrompus.

Enfin, dans un troisième temps, la réalisation d'analyses MEB-EBSD sur les disques testés permet d'étudier les mécanismes de fissuration et de déformation sous He et sous  $H_2$ . La comparaison He/ $H_2$  met en évidence la fragilisation par l'hydrogène de l'acier AISI 4135 au cours des essais de disque sous  $H_2$ .

Pour conclure, l'influence des différents paramètres considérés est statuée et des suggestions d'amélioration sont apportées au protocole d'essai.

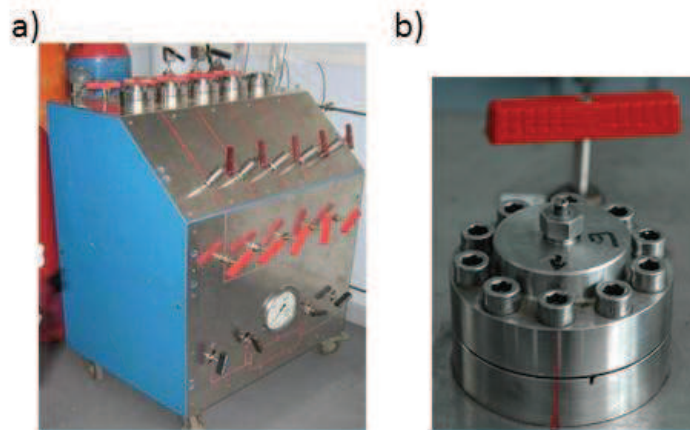
#### III.1. Protocole d'essai

##### III.1.a. Configuration du banc d'essai

Tous les essais de disque sont réalisés sur les bancs d'essai du Centre Technique et d'Expertise (CTE) d'Air Liquide situé au Blanc-Mesnil (93). Les bancs d'essai possèdent chacun cinq voies de circulation pour le gaz et l'un des bancs étant destiné aux essais sous He et l'autre aux essais sous  $H_2$ , la Figure III.1.1 présentant une photo du banc He.

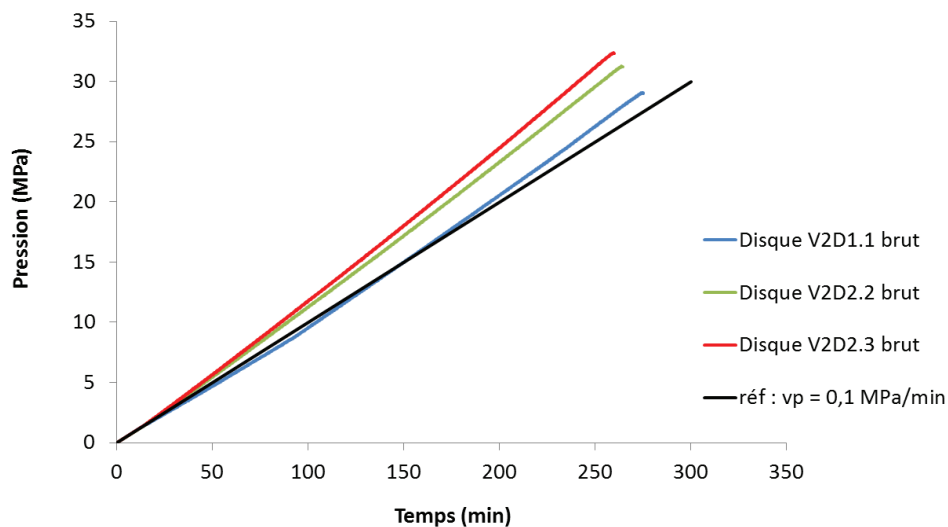
Les essais, aussi bien sous He que sous  $H_2$  sont effectués avec la même bride supérieure, référencée n°9 (Figure III.1.1) et présentant un rayon de courbure de l'outil de maintien dont la valeur contrôlée a posteriori était  $R_c = 0,8$  mm. Cette bride supérieure avait été choisie car elle présente un rayon de courbure constant sur la circonférence. L'étanchéité est assurée à l'aide un joint élastomère (composé de polytétrafluoroéthylène ou PTFE) et le couple de serrage est de 30 N.m, le serrage étant effectué par couple de vis diamétralement opposées. Pour chaque banc d'essai, une voie est réservée pour les essais, sous He il s'agit de la voie cp05 et sous  $H_2$  de la voie cp09.



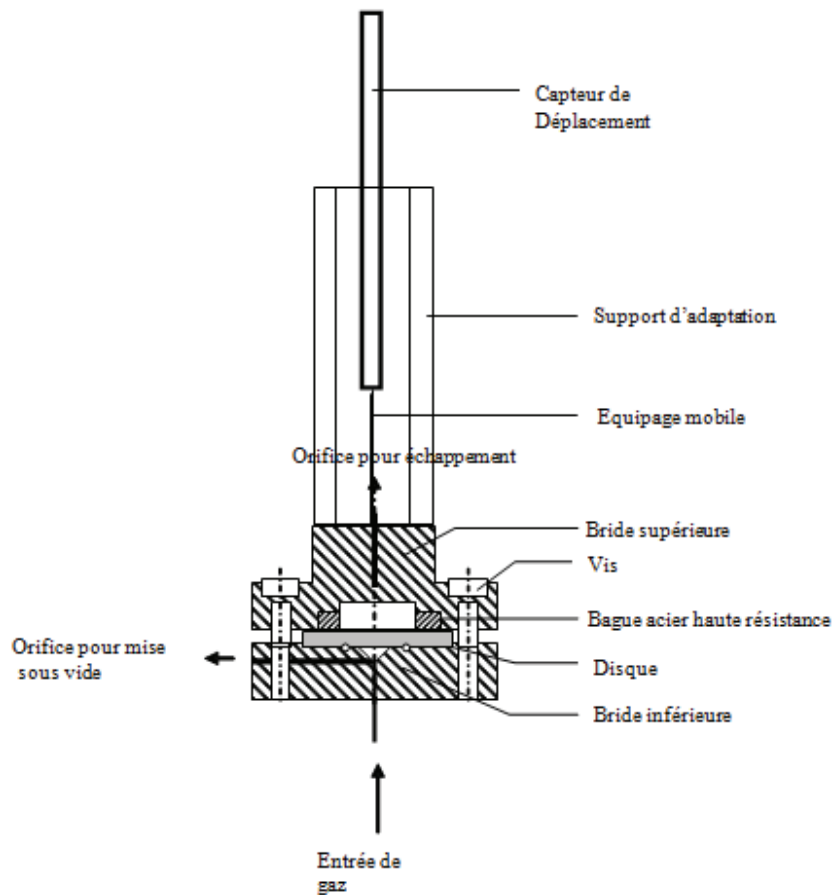


**Figure III.1.1.** a) Banc d'essai de disque destiné aux essais sous He utilisé au CTE. Les cinq voies de circulation de gaz sont localisées par les vannes rouges. b) bride supérieure utilisée pour les essais de disque.

La vitesse de pressurisation de référence pour l'ensemble des essais réalisés est fixée à  $v_p = 0,10$  MPa/min, correspondant à une vitesse de  $1,6 \cdot 10^3$  Pa/s. Le réglage de la vitesse de pressurisation est réalisé de manière indirecte en ajustant la pression contenue dans une capacité en amont de la cellule d'essai. Ce type de réglage pouvant induire une dérive de la vitesse de pressurisation au cours de l'essai (Figure III.1.2).



**Figure III.1.2.** Evolution de la pression en fonction du temps pour les disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm et comparaison à la vitesse de référence  $v_p = 0,1$  MPa/min.



**Figure III.1.3.** Représentation schématique de l'instrumentation de la cellule d'essai.

L'essai de disque permet d'accéder à deux types de mesures expérimentales :

- la pression de rupture avec une précision  $\pm 0,1$  MPa, la rupture est considérée comme atteinte quand la pression chute de 10% dans la cellule ;
- les courbes flèche-pression, accessible suite à l'installation d'un capteur de déplacement sur la cellule d'essai (Figure III.1.3), le capteur est un LVDT SX12 (Linear Variable Differential Transformer) permettant de mesurer le déplacement du pôle du disque au cours de l'essai avec une précision de  $\pm 0,015$  mm.

### III.1.b. Essais de disques réalisés

Deux types d'essais sont réalisés : des essais de disques à rupture stricto sensu (38 essais) et des essais interrompus avant la rupture (14 essais), sous  $H_2$  et sous He. La durée de chaque essai varie typiquement entre 2h et 16h. La Figure III.1.1 indique le positionnement dans la bouteille des différents disques utilisés. La numérotation des échantillons ayant été faite par gravure, tous les disques possèdent une face gravée. Cette face a été nommée face 1 et il a été décidé que la face 2 (non gravée) soit la face soumise au gaz lors des essais de disque.

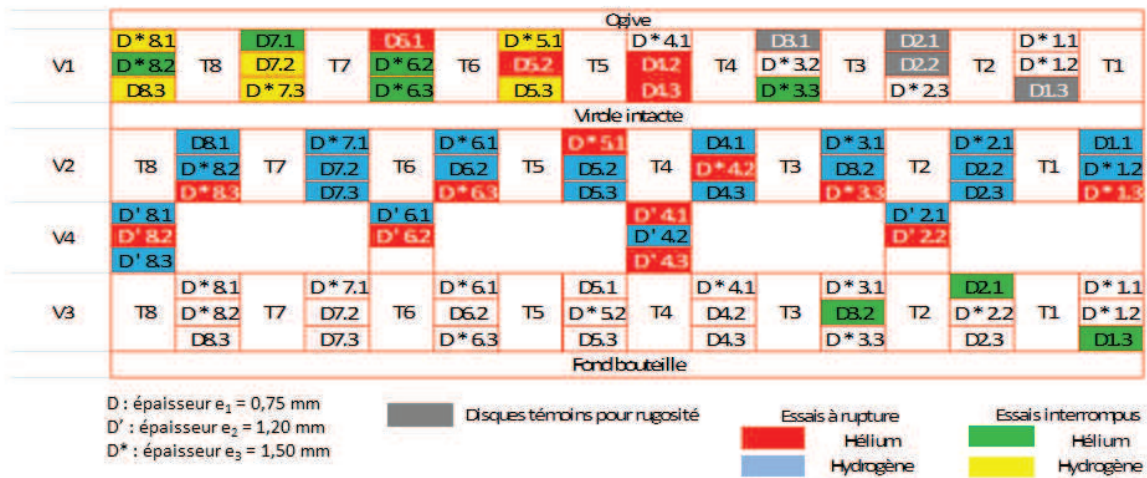


Figure III.1.4. Emplacement des disques dans la bouteille.

Les essais à rupture ont été plus particulièrement utilisés pour l'étude :

- de l'influence de l'état de surface sur la pression de rupture ( $P_{rupt}$ ) sous  $H_2$ , sur des disques d'épaisseurs  $e_1 = 0,75$  mm, (épaisseur de la norme ISO [1]), pour quatre états de surface :
  - état rectifié après usinage dit état brut : 3 essais;
  - polissage grade SiC 220 (procédure CTE) : 3 essais;
  - polissage grade SiC 800 : 3 essais;
  - polissage grade SiC 4000 : 3 essais.
- de l'influence de l'épaisseur des disques sur l'indice de fragilisation. Des disques plus épais que ceux de la norme permettent d'accéder à des pressions plus élevées, et donc d'analyser l'extension potentielle du domaine de qualification par essai de disque. Trois épaisseurs de disque ont été considérées :
  - $e_1 = 0,75$  mm : 3 essais He et 3 essais  $H_2$  ;
  - $e_2 = 1,20$  mm : 5 essais He et 5 essais  $H_2$  ;
  - $e_3 = 1,50$  mm : 5 essais He et 5 essais  $H_2$ .

Les essais interrompus ont été prévus pour analyser sous He et sous  $H_2$  l'évolution de la fissuration des disques à différents stades de l'essai. Les pressions d'arrêt ont été choisies en se basant sur les courbes flèche-pression des essais à rupture (voir paragraphe III.2.c.) Les essais interrompus ont réalisés sur les épaisseurs  $e_1$  et  $e_3$  :

- 3 essais par épaisseur sous  $H_2$  ;
- 4 essais par épaisseur sous He.

L'ensemble des disques issus des essais a permis de disposer d'échantillons pour l'analyse des mécanismes de fissuration à l'échelle macroscopique et par MEB-EBSD.

### III.1.c. Contrôle de la rugosité des disques

Les mesures de rugosité ( $Ra$  en  $\mu\text{m}$ ) sur les disques d'épaisseur  $e_1$  et  $e_3$  issus des viroles  $V_1$ ,  $V_2$  et  $V_3$  ont été réalisées au CTAS (Centre Technique des Applications du Soudage) et les mesures sur les disques d'épaisseur  $e_2$  issus de la virole  $V_4$  au CRPS.

#### i. Mesures de rugosité au CTAS

L'appareil utilisé est un Mitutoyo SJ-201M d'une résolution de  $Ra = 0,01 \mu\text{m}$  avec une plage de mesure de  $0,02$  à  $305 \mu\text{m}$  dont l'étalonnage a été fait avec un échantillon test calibré pour une rugosité  $Ra = 3,00 \mu\text{m}$  sur une longueur de  $l = 10 \text{ mm}$ . Les mesures de rugosité des disques à l'état brut ont été réalisées sur l'ensemble des 72 disques des viroles  $V_1$ ,  $V_2$  et  $V_3$ . Sur la virole  $V_1$ , 4 mesures par face ont été réalisées, cependant en raison de contraintes de temps, seulement 3 mesures par face ont par la suite été faites sur les viroles  $V_2$  et  $V_3$ .

La Figure III.1.5 et la Figure III.1.6 montrent la rugosité moyenne mesurée respectivement sur les faces 1 et 2 des disques à l'état brut. La rugosité moyenne calculée pour la face 2 de l'ensemble des disques est de  $Ra = 0,75 \mu\text{m} \pm 0,25 \mu\text{m}$ . Cependant les résultats présentent une dispersion importante,  $Ra$  variant entre  $0,40 \mu\text{m}$  et  $1,60 \mu\text{m}$ . On remarque notamment que les dispersions les plus importantes dans les valeurs de  $Ra$  sont obtenues pour les disques situés sur les génératrices 1 et 8 alors que les dispersions les plus faibles sont obtenues sur les génératrices 3, 5 et 6. La rectification des disques ayant été effectuées lors de l'usinage, ceci suggère que les disques situés sur les génératrices 3, 5 et 6 présentent des duretés plus élevées se traduisant par une sensibilité moindre à l'abrasion.

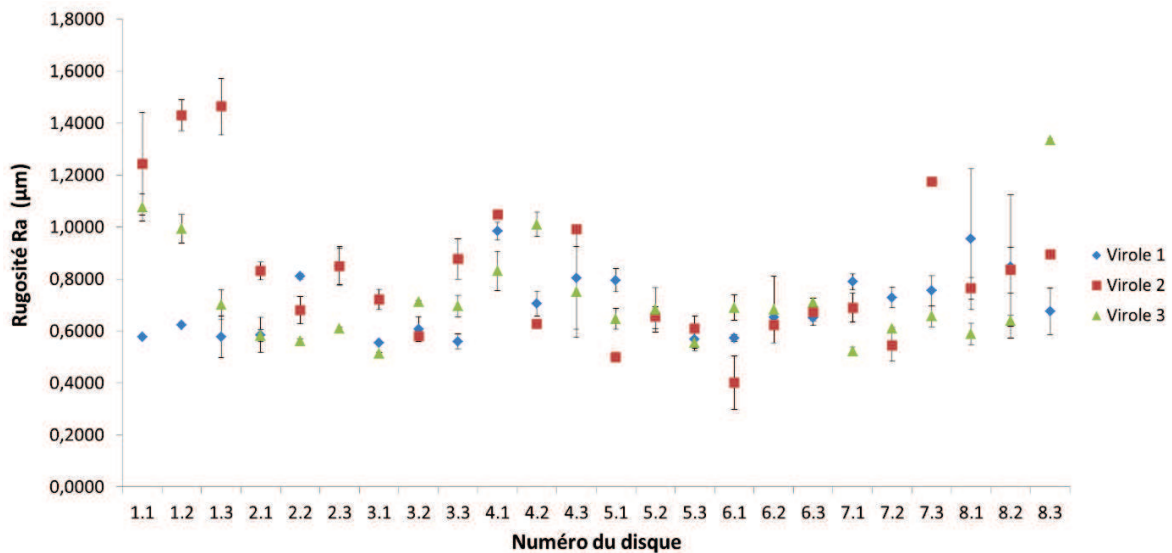


Figure III.1.5. Valeur moyenne et dispersion des mesures de rugosité de la face 1 des disques à l'état brut prélevés dans les viroles  $V_1$ ,  $V_2$  et  $V_3$ .

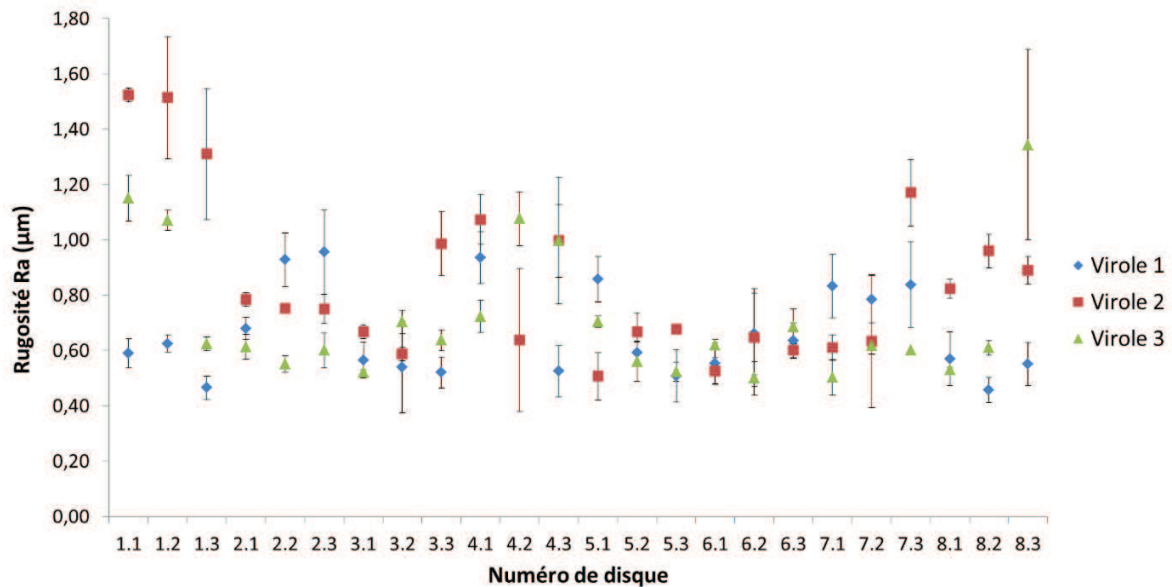


Figure III.1.6. Valeur moyenne et dispersion des mesures de rugosité de la face 2 des disques à l'état brut prélevés dans les viroles V<sub>1</sub>, V<sub>2</sub> et V<sub>3</sub>.

Les 4 disques sélectionnés pour servir de témoins pour la caractérisation des différents états de surface sont issus de la virole V<sub>1</sub>. Il s'agit des disques V1D1.3, V1D2.1, V1D2.2 et V1D3.1 dont les états de surface respectifs après polissage sont : état brut, grade SiC 220 (procédure CTE), grade SiC 800 et grade SiC 4000. Le Tableau III.1.1 présente l'épaisseur moyenne des disques, calculée sur une base de 4 mesures par disque. Les mesures sont effectuées avant et après polissage avec un micromètre digital de marque Mitutoyo © avec une précision de ± 0,5 µm. La mesure d'épaisseur avant polissage montre que l'épaisseur des disques brut est en accord avec la spécificité de la norme stipulant une épaisseur  $e = 0,75 \text{ mm} \pm 0,005 \text{ mm}$  [1].

Tableau III.1.1. Epaisseur des disques avant et après polissage.

Grade de polissage	Epaisseur avant (mm)	Epaisseur après (mm)
SiC 220	0,745	0,723
SiC 800	0,752	0,720
SiC 4000	0,748	0,680

Le polissage provoque une perte de matière assez importante (de 20 à 70 µm). Ceci est dû à la présence de stries locales très marquées dans les disques à l'état brut, causées par la rectification, et nécessitant un polissage poussé pour être éliminées. La Figure III.1.7 montre les rugosités moyennes mesurées sur la face 2 des disques polis. Les résultats montrent que le polissage diminue significativement la dispersion des mesures de rugosité passant d'une dispersion de l'ordre de 0,20 µm sur le disque à l'état brut) à une dispersion de l'ordre de 0,01 µm sur le disque au grade SiC 4000. Ceci est cohérent avec les grades de polissage pratiqués, le grade SiC 4000 assurant un polissage plus fin et donc un état de surface plus homogène que le grade SiC 220 ou l'état brut.

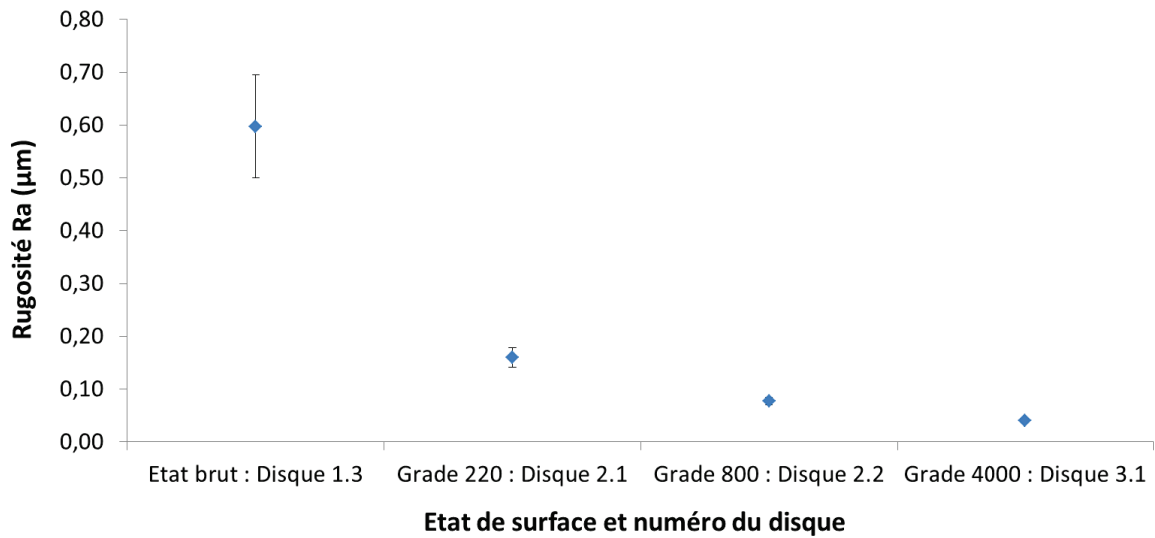


Figure III.1.7. Rugosité moyenne et dispersion mesurée de la face 2 des disques témoins.

## ii. Mesures de rugosité au CRPS

Les mesures ont été faites sur le profilomètre DektakXT (Bruker ©) du CRPS, profilomètre à contact. Les conditions d'acquisition des mesures sont : longueur des segments de mesure de  $l = 5000 \mu\text{m}$ , la force d'appui du stylet étant de  $F = 3.10^{-5} \text{ N}$  et vitesse de mesure de  $v = 100 \mu\text{m/s}$ . Lors de cette campagne de mesure de rugosité, les disques contrôlés sont les disques d'épaisseur  $e_2 = 1,20 \text{ mm}$ , issus de la virole  $V_4$ . A titre de comparaison, deux disques témoins d'épaisseur  $e_1$  et  $e_3$  issus de la virole  $V_3$  sont également contrôlés avec le profilomètre du CRPS. Les résultats sont donnés Figure III.1.8, présentant la rugosité moyenne des disques calculée sur une base de 4 mesures réalisées sur la face 2.

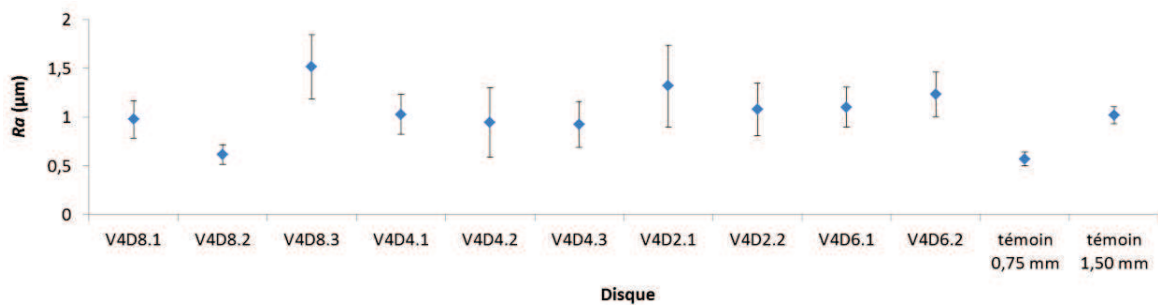
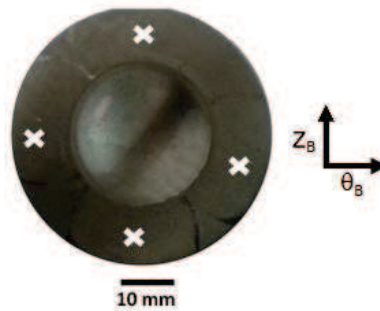


Figure III.1.8. Rugosité moyenne avec barres d'erreur de la face 2 des disques d'épaisseur  $e_2$  issus de la virole  $V_4$  et des disques témoins.

On remarque que les rugosités mesurées sur les disques d'épaisseur  $e_2$  sont globalement supérieures à celles mesurées sur les disques témoins. Le prélèvement des disques dans la virole  $V_4$  étant issu d'un lot d'usinage différent des autres viroles, il apparaît que la qualité de la surface des disques d'épaisseurs  $e_1$  et  $e_3$  est supérieure à celle des disques d'épaisseur  $e_2$ .

### III.1.d. Mesure de la dureté des disques

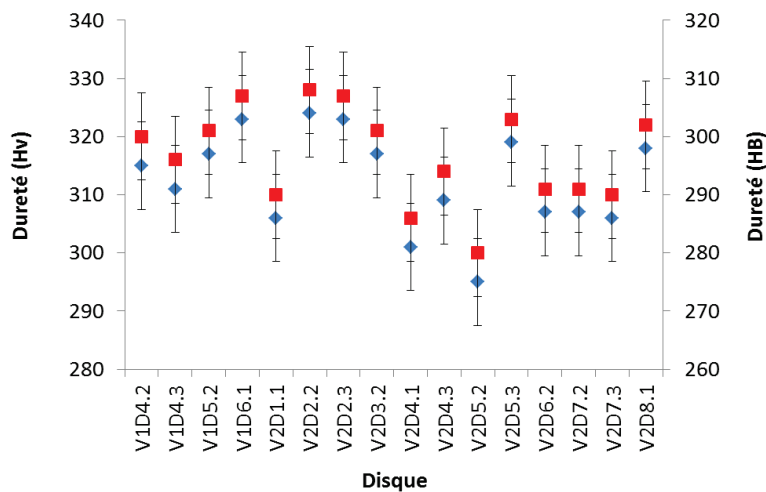
Le contrôle de la dureté des disques est une étape prévue par le protocole d'essai de disque selon la norme ISO [1], cependant, aucun essai de dureté n'est spécifié. Dans le travail présenté ici deux types d'essais de dureté sont utilisés : des mesures de dureté Vickers sur les disques d'épaisseur  $e_1$  (états de surface brut et polis) et des mesures de dureté Brinell sur les disques d'épaisseurs  $e_2$  et  $e_3$  (état de surface brut). Toutes les mesures de dureté ont lieu au CTE, elles sont localisées sur 4 points à  $90^\circ$  sur la couronne extérieure des disques, partie du disque non exposée à l'hydrogène (zone de serrage, voir Figure III.1.9).



**Figure III.1.9.** Vue de dessous d'un disque d'épaisseur  $e_2 = 1,20$  mm après essai à rupture et localisation des points de mesure de dureté Brinell et Vickers (croix blanches).

#### i. Dureté des disques d'épaisseur $e_1$

L'appareillage est un microduromètre Duramin de marque Struers, le temps d'application de l'indenteur est de 7 s pour une charge de 2 N. Les résultats des mesures de dureté Vickers (Hv) et leur équivalent en dureté Brinell (HB) sont donnés à la Figure III.1.10. On remarque que les valeurs obtenues sont comprises entre HB = 286 et HB = 308 ce qui est supérieur aux spécificités de la bouteille qui indiquent HB = 270 et HB = 290.



**Figure III.1.10.** Mesures de dureté Vickers (Hv) en bleu et Brinell (HB) en rouge sur les disques d'épaisseur  $e_1$  issus des viroles  $V_1$  et  $V_2$ .



## ii. Dureté des disques d'épaisseur $e_2$ et $e_3$

Les mesures sont effectuées sur un appareil Testwell© et les conditions d'acquisition sont les suivantes : bille de 2,5 mm de diamètre, charge de 1839 N et temps de 15 s. Les résultats sont donnés à la Figure III.1.11 et à la Figure III.1.12 respectivement pour les épaisseurs  $e_2$  et  $e_3$ . Les valeurs obtenues sont comprises entre HB = 290 et HB = 304 ce qui est en accord avec les mesures faites sur l'épaisseur  $e_1$ . On remarque que l'écart entre les valeurs de dureté maximale et minimale est plus resserré pour les disques d'épaisseurs  $e_2$  et  $e_3$  par rapport à l'écart observé dans les disques d'épaisseur  $e_1$ . Ceci suggère que les mesures de dureté Brinell, donnant accès à une valeur de dureté moyenne de la surface du disque, confèrent une meilleure reproductibilité des résultats.

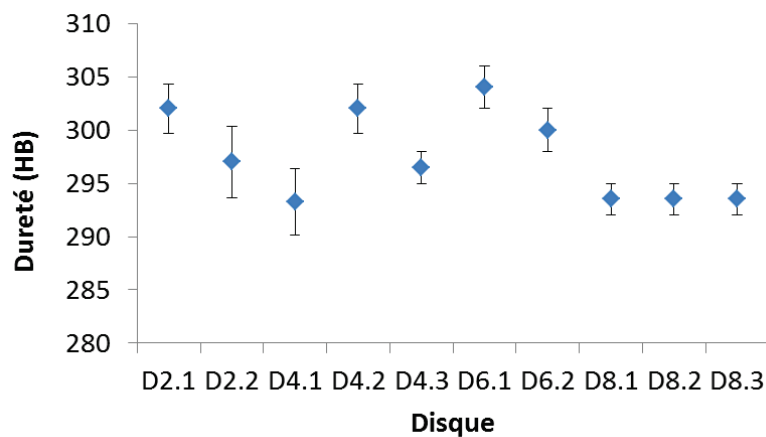


Figure III.1.11. Mesures de dureté Brinell (HB) sur les disques d'épaisseur  $e_2$  issus de la virole  $V_2$ .

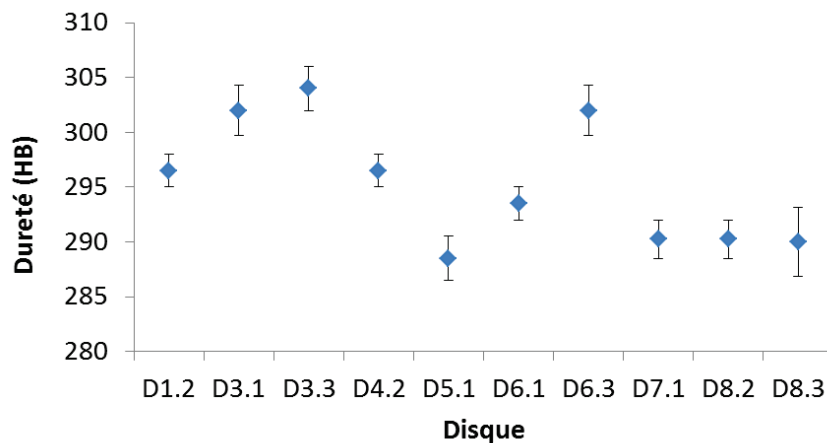
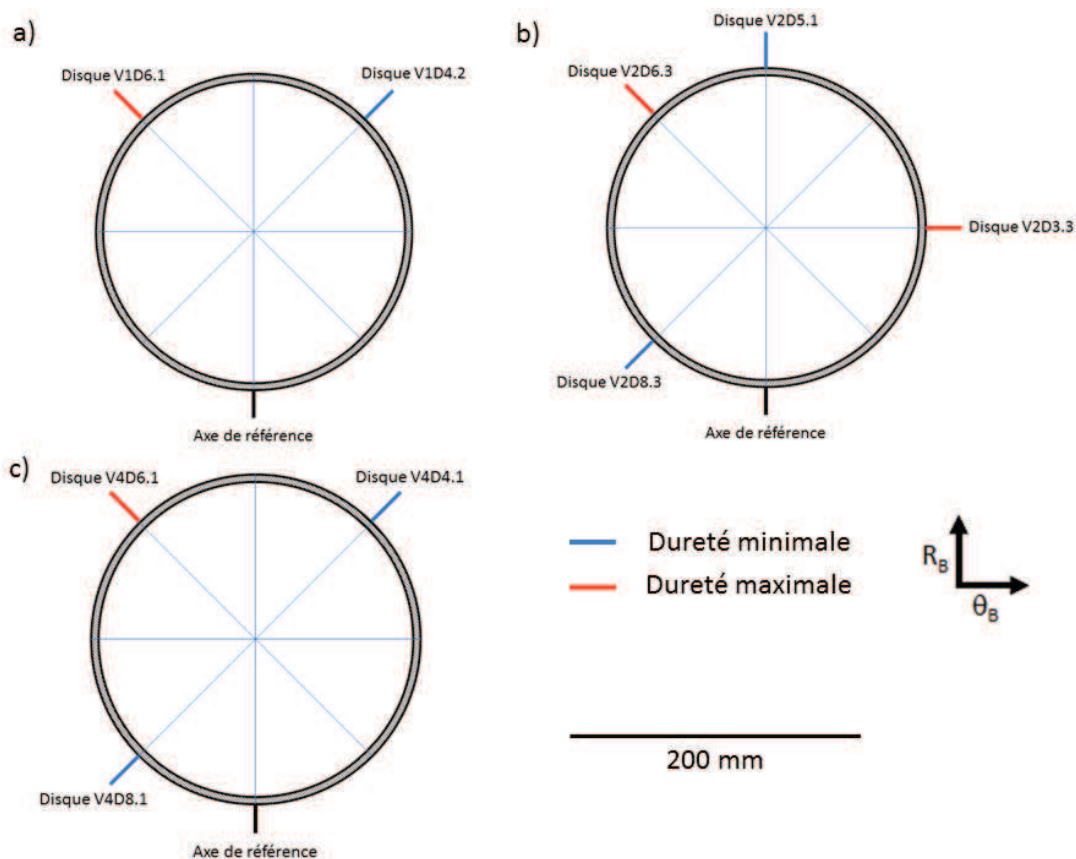


Figure III.1.12. Mesures de dureté Brinell (HB) sur les disques d'épaisseur  $e_3$  issus de la virole  $V_4$ .

### iii. Lien entre dureté et positionnement

La Figure III.1.13 représente le positionnement des minima et des maxima de dureté sur la circonférence des viroles  $V_1$ ,  $V_2$  et  $V_4$ . On remarque que les valeurs maximales de dureté sont localisées selon l'axe de prélèvement n°6 alors que les valeurs minimales sont localisées sur les axes n°4 et n°8.



**Figure III.1.13.** Représentation schématique en vue du dessus du positionnement des maxima et des minima de dureté selon les axes de prélèvement des disques pour les viroles: a)  $V_1$ , b)  $V_2$  et c)  $V_3$ .

Ces observations sont cohérentes avec les résultats obtenus lors de la caractérisation de la bouteille. Ainsi les mesures de microdureté Vickers effectuées dans les éprouvettes de traction (présentés au paragraphe II.2.b.) montraient que les valeurs de microdureté Vickers les plus élevées étaient localisées à la position de prélèvement n°6 alors que la position de prélèvement n°8 correspondait aux valeurs de microdureté les plus faibles. Il convient par ailleurs de noter que lors des mesures de rugosité, la position de prélèvement n°6 présentait une dispersion des résultats inférieure aux autres positions de prélèvement, ce qui est cohérent avec la présence de valeurs de dureté plus élevées.

D'ailleurs, la position de prélèvement n°6 correspondait également à un maxima dans les valeurs de résistance à la traction  $R_m$ . Il apparaît donc que l'axe de prélèvement n°6 présente des propriétés mécaniques supérieures aux autres axes de prélèvement, ce qui peut avoir été causé par le procédé de fabrication des bouteilles.

## III.2. Résultats des essais de disque

### III.2.a. Pressions de rupture et indice de fragilisation

#### i. Influence de l'état de surface la rupture sous $H_2$

Les pressions de rupture sous  $H_2$  en fonction de la rugosité des disques sont données à la Figure III.2.1 où un point correspond à un essai de disque. On constate que  $P_{rupt}$  augmente lorsque la rugosité diminue, indiquant que l'état rectifié après usinage est le plus fragilisant.

Cependant, on observe de grands écarts dans les valeurs de  $P_{rupt}$  quand  $R_a$  diminue et donc que le grade de polissage augmente. Cette dispersion peut être due à la difficulté de reproductibilité du polissage manuel d'un disque à l'autre pour un grade de polissage donné.

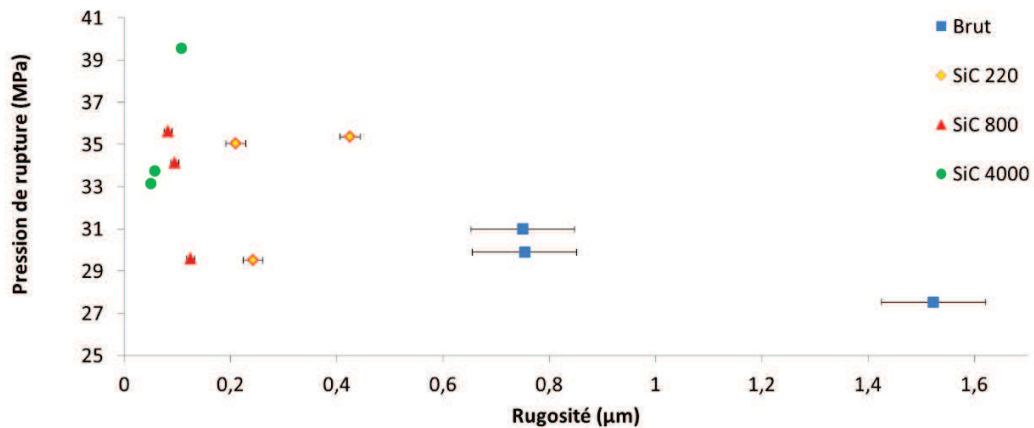


Figure III.2.1. Pression de rupture en fonction de la rugosité avec barres d'erreurs.

Pour les différents états de surface étudiés, les disques présentent une rupture sous  $H_2$  par fissuration sans « décalottage » (Figure III.2.2), à l'exception des disques V2D3.2 et V2D7.2 (voir paragraphe III.3.b.).

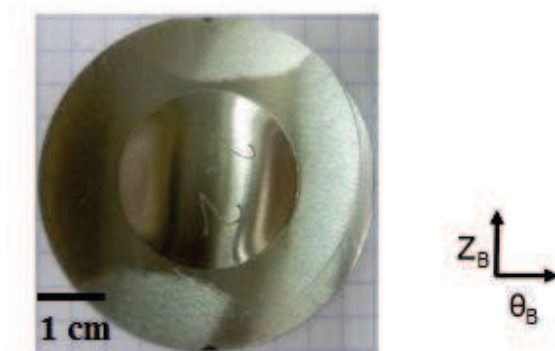


Figure III.2.2. Vue du dessus du disque V2D2.2 (état brut) rompu sous  $H_2$ .

Afin d'avoir une idée globale de la fissuration sur la face interne des disques, des observations sur l'ensemble de la circonférence ont été effectuées sur 4 disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm, un pour chaque état de surface :

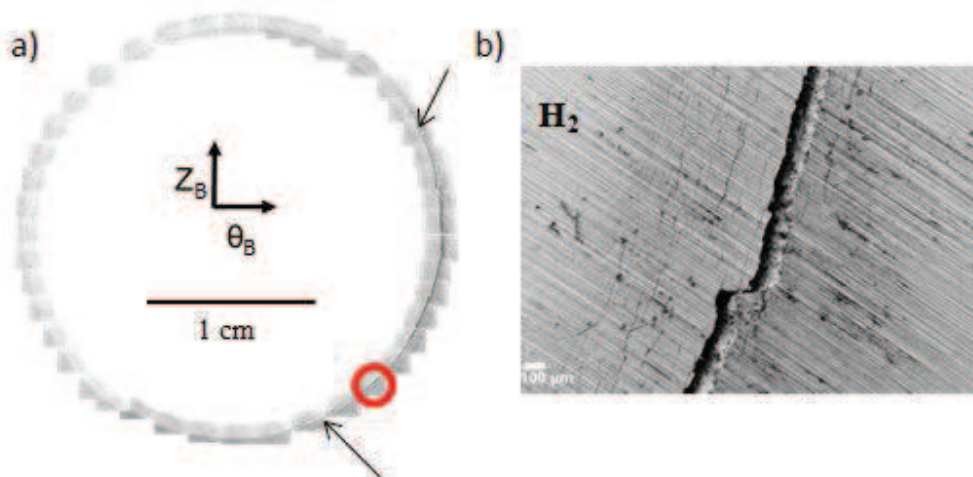
- état brut : disque V2D2.3 (Figure III.2.3) ;
- grade 220 : disque V2D4.3 (Figure III.2.4) ;
- grade 800 : disque V2D5.3 (Figure III.2.5) ;
- grade 4000 : disque V2D7.3 (Figure III.2.6).

**Tableau III.2.1.** Récapitulatif de la fissuration sur les différents états de surface.

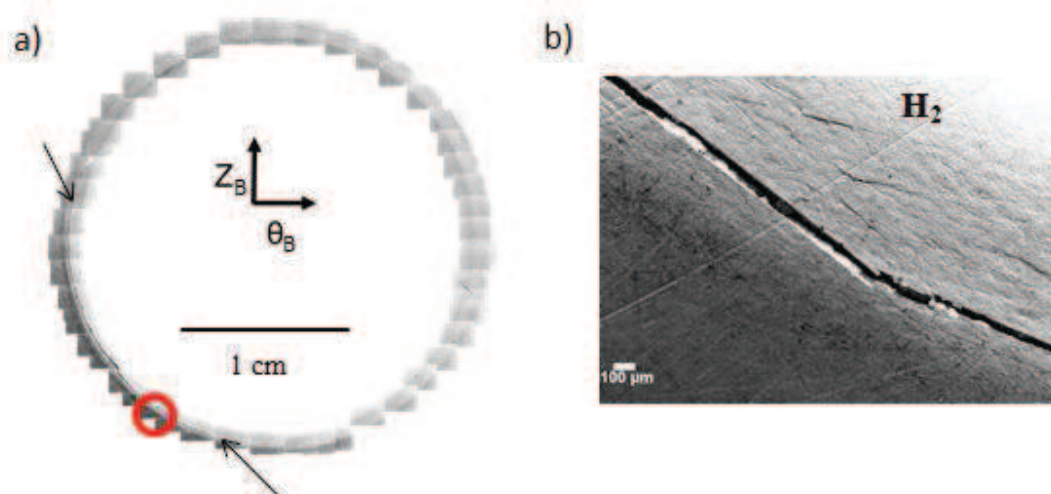
Disque	Longueur (mm)	Ouverture (mm)
Brut	18,0	0,100
Grade SiC 220	13,0	0,060
Grade SiC 800	5,0	0,060
Grade SiC 4000	6,0	>0,060

Après reconstitution par vues panoramiques de l'ensemble de la circonférence pour chaque état, un traitement d'images a été effectué en ajustant le contraste et la luminosité des images pour estimer la taille des fissures macroscopiques pour un grandissement de 50x. Les mesures sont réalisées par segments en considérant que la fissure est une succession de secteurs rectilignes avec une précision de  $\pm 0,01$  mm. Les résultats montrent que la fissuration sur l'état brut est plus importante en termes de longueur et d'ouverture de fissure que pour les états polis (Tableau III.2.1).

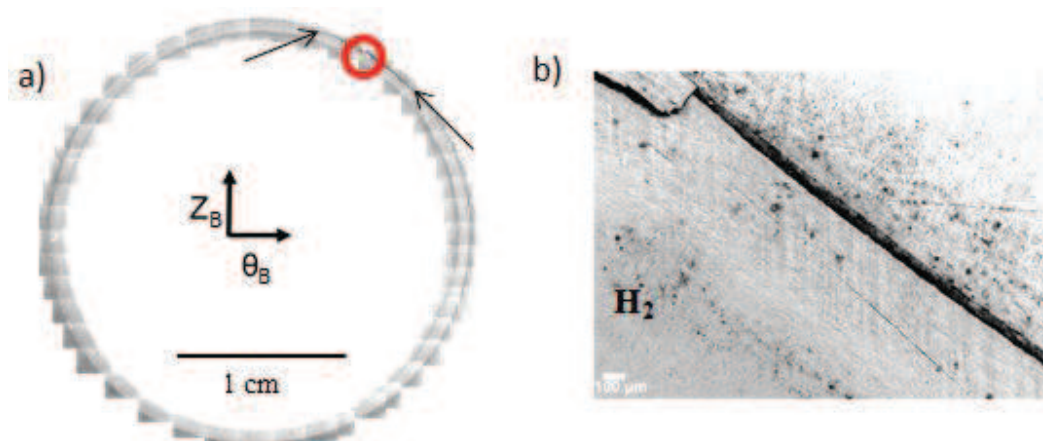
Il en ressort que l'état brut présente une zone endommagée plus importante que les états polis ( $\sim 900$   $\mu\text{m}$  sur l'état brut contre  $\sim 600$   $\mu\text{m}$  sur les autres états) avec une macrofissuration semblant se propager par paliers successifs (Figure III.2.3). Sur les états polis aux grades SiC 220 et 800, la macrofissuration apparaît localement très rectiligne (Figure III.2.4 et Figure III.2.5). L'état poli au grade 4000, quant à lui, présente une macrofissuration similaire à de celle de l'état brut mais néanmoins moins importante (Figure III.2.6).



**Figure III.2.3.** Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D2.3 (état brut de rectification) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.

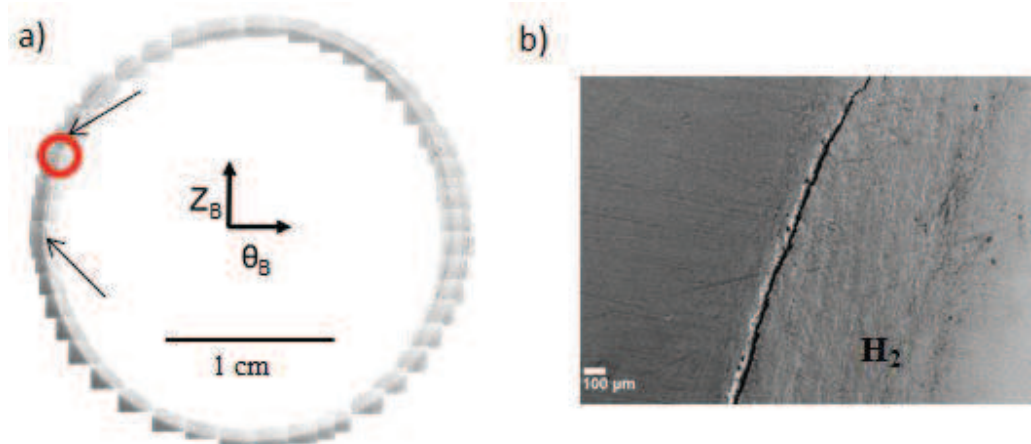


**Figure III.2.4.** Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D4.3 (état poli grade 220, procédure CTE) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.



**Figure III.2.5.** Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D5.3 (état poli grade 800) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.

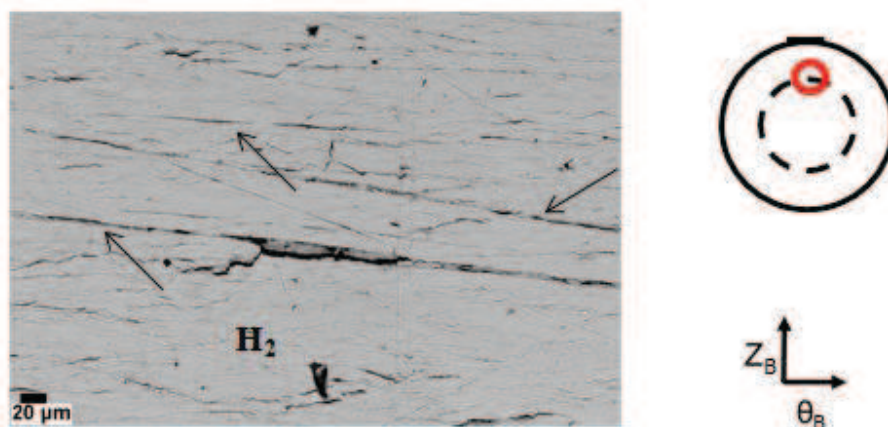




**Figure III.2.6.** Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D7.3 (état poli grade 4000, état miroir) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.

L'observation de la microfissuration montre que sur les états polis aux grades SiC 220 et 800 les microfissures apparaissent très rectilignes et évoquent des rayures de polissage marquées (Figure III.2.7 et Figure III.2.8). Sur le grade SiC 4000, l'amélioration de l'état de surface permet d'observer des microfissures de la microstructure, où le rôle des joints de grains et des carbures semble prédominant (Figure III.2.9).

Sur l'état brut les stries de rectification semblent localement favoriser la fissuration (Figure III.2.10) et ce même lorsque le parcours moyen de la fissuration est sécant aux tries de rectification. L'endommagement étant présent sur l'ensemble de la circonférence des disques à l'état brut, il semble que la présence des stries de rectification permette un endommagement plus homogène et mieux réparti que les états polis, pour lesquels les sites d'initiation liés à la rugosité sont moins nombreux.



**Figure III.2.7.** Fissuration, indiquée par les flèches noires, s'appuyant localement sur les rayures de polissage sur le disque V2D4.1 (grade 220).

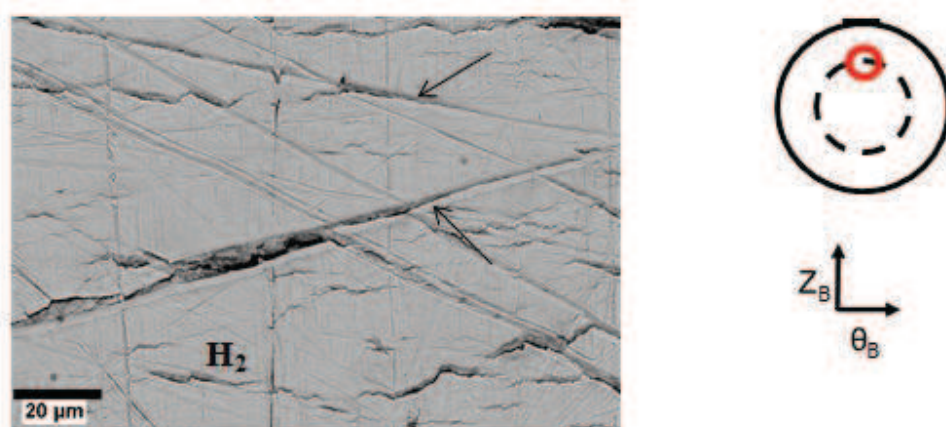


Figure III.2.8. Fissuration, indiquée par les flèches noires, s'appuyant localement sur les rayures de polissage sur le disque V2D5.2 (grade 800).

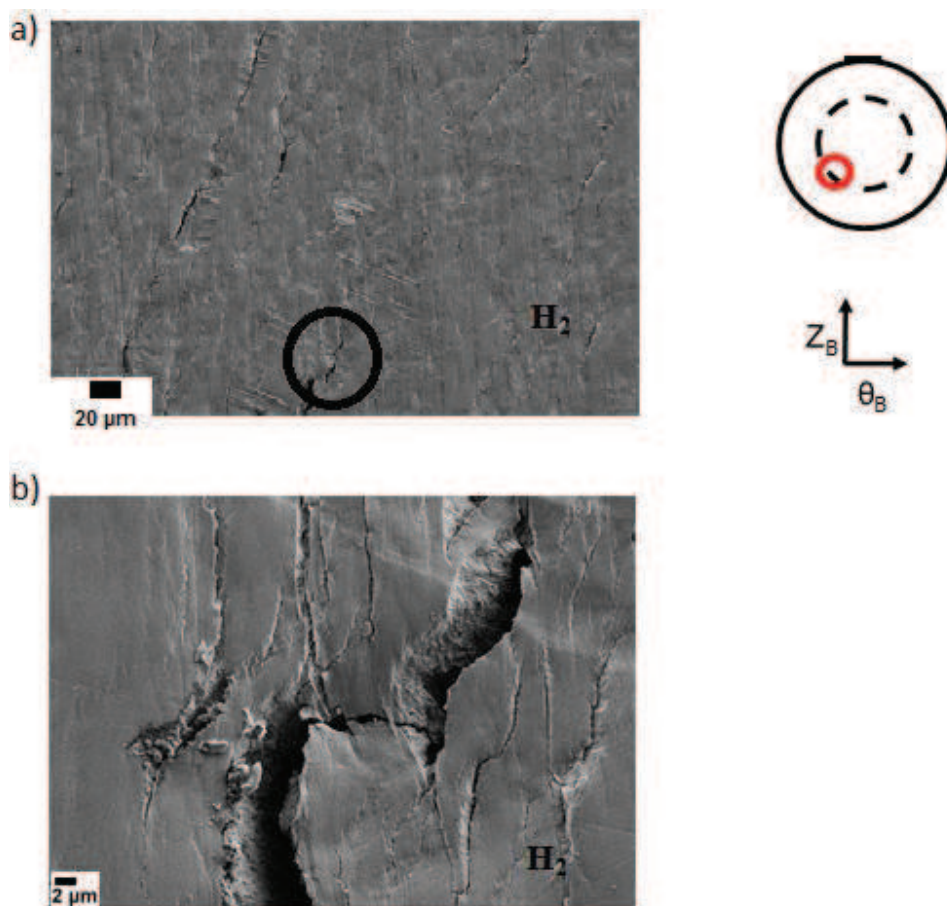


Figure III.2.9. Microfissuration sur le disque V2D8.1 (grade 4000) : a) vue globale et b) agrandissement de la zone entourée en noir.



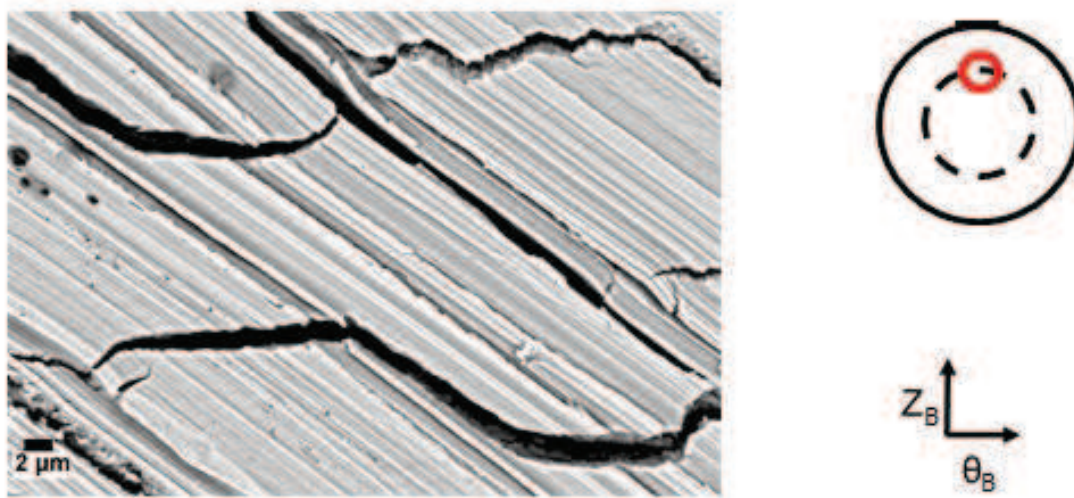


Figure III.2.10. Microfissuration s'appuyant localement sur les stries de rectification sur l'état brut (disque V2D2.2).

Pour éviter la rupture complète de l'échantillon au cours des étapes de préparation (découpe et polissage), des sections ( $z_d, r_d$ ) ont été prélevées en dehors de la zone de la macrofissure. Ainsi des sections ( $z_d, r_d$ ) où  $r_d$  est colinéaire à  $Z_b$  dans les disques V2D1.1 (état brut) et V2D6.2 (grade SiC 800) ont été choisies.

A l'état brut des portions de fissures sont visibles dans ces sections (Figure III.2.11) ce qui ne semble pas être le cas pour les états polis (Figure III.2.12), suggérant un endommagement plus réparti dans l'état brut. Pour l'état poli, des observations ont pu également être faites dans une section de la zone de la macrofissure (Figure III.2.13).



Figure III.2.11. Fissuration, entourée en noir, à l'état brut (disque V2D1.1) dans une section radiale où  $r_d$  est colinéaire à  $Z_b$ .



Figure III.2.12. Absence de fissuration dans le grade SiC 800 (disque V2D6.2) dans une section radiale où  $r_d$  est colinéaire à  $Z_B$ .

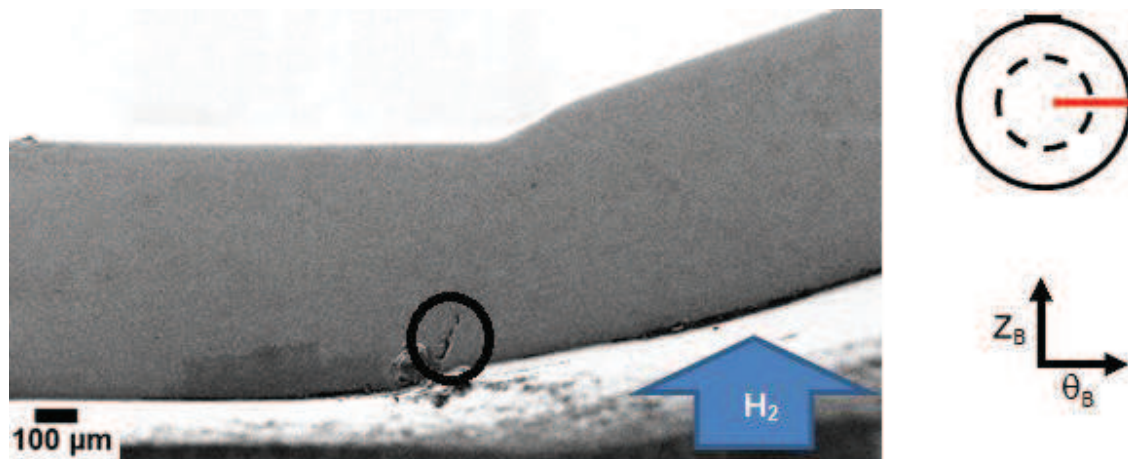


Figure III.2.13. Fissuration, entourée en noir, dans le grade SiC 800 (disque V2D6.2) dans une section radiale où  $r_d$  est orthogonal à  $Z_B$ .

Les résultats montrent que l'état de surface brut assure un endommagement réparti de façon homogène sur la surface du disque et que les états polis peuvent être source de dispersion dans les valeurs des pressions de rupture. En effectuant des observations dans des sections radiales des disques, il a été montré que certaines sections ne présentent pas de fissure dans l'épaisseur du disque, suggérant que l'endommagement en surface ne conduit pas forcément à l'initiation d'une fissure dans l'épaisseur du disque. Cependant, afin de limiter les sources de dispersion potentielles dans les prochains essais, il est décidé de n'utiliser que des disques à l'état rectifié dans la suite des essais.

## ii. Influence de l'épaisseur sur l'indice de fragilisation

Les pressions de rupture obtenues par les essais de disques sont présentées à la Figure III.2.14. Le matériau étant sensible à l'hydrogène il en ressort une baisse significative de la pression de rupture sous  $H_2$  par comparaison avec la pression de rupture sous He. La dispersion des résultats est relativement faible sous He, sauf pour la plus forte épaisseur, et les pressions de rupture varient quasiment linéairement (coefficient de corrélation  $R^2 = 0,9843$ ) avec l'épaisseur des disques. La dispersion sous  $H_2$  est plus forte, et les pressions obtenues pour  $e_3 = 1,5$  mm semblent suggérer un écart à la linéarité ( $R^2 = 0,7953$ ).

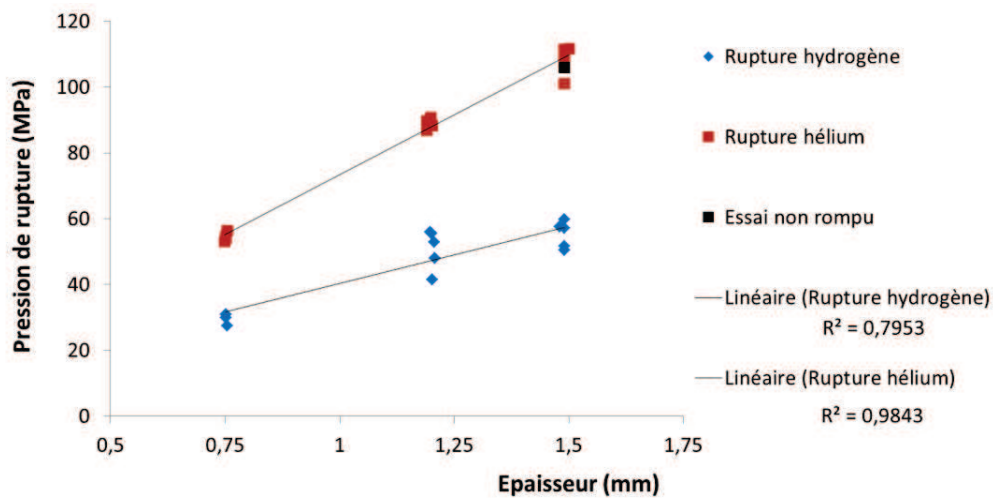


Figure III.2.14. Pressions de rupture sous hélium et sous hydrogène en fonction de l'épaisseur des disques.

L'essai représenté par un carré noir sur la Figure III.2.14 correspond au premier disque testé sous He pour l'épaisseur de disque  $e_3 = 1,50$  mm. Ce disque (numéroté V2D1.3) n'a pas rompu et l'essai a été arrêté à  $P_{arrêt} = 106$  MPa car le banc d'essai ne permettait pas d'atteindre des pressions plus élevées. Il a alors fallu changer la vanne de réglage de débit de gaz du banc pour atteindre la pression de rupture sur les essais suivants.

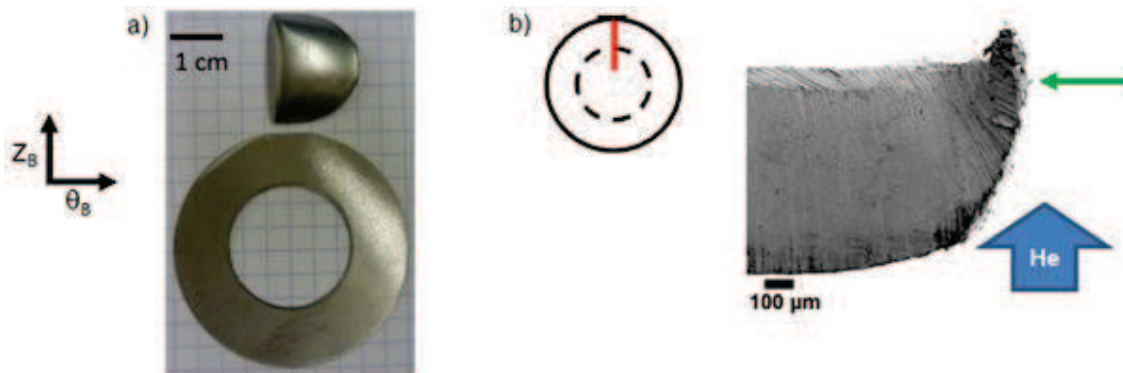
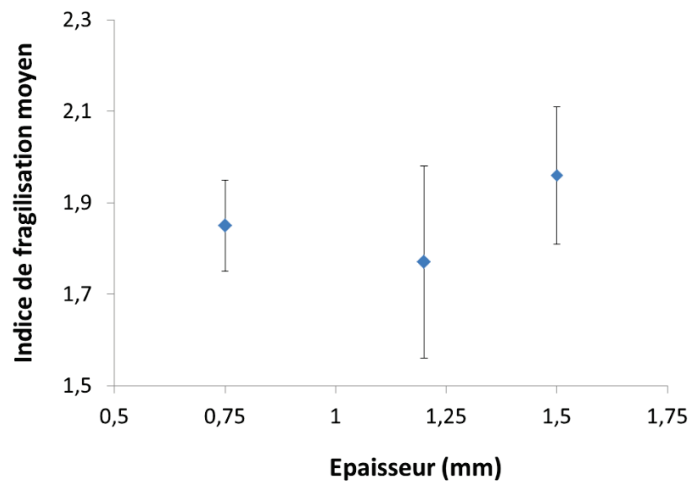


Figure III.2.15. Photo de disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm rompus sous He : a) vue globale du disque V1D6.1 et b) vue en coupe radiale du disque V1D5.2, la flèche verte indique le point d'observation du faciès de rupture (voir paragraphe III.3.a.i.).

Le disque V2D1.3 a été utilisé par la suite pour les investigations sur les mécanismes de fissuration sous hélium. Tous les autres disques testés sous He présentant une rupture par « décalottage » total du disque (Figure III.2.15) et ce indépendamment de l'épaisseur des disques.

La Figure III.2.16 montre l'évolution de l'indice de fragilisation moyen  $I_{moy}$  en fonction de l'épaisseur des disques. L'indice de fragilisation moyen correspond à la moyenne des indices  $I$ , calculés pour une épaisseur donnée en utilisant tous les couples possible de pressions de rupture sous He et sous  $H_2$ . Les indices de fragilisation moyens  $I_{moy}$  et les pressions moyennes de rupture  $P_{rupt}$  sous He et sous  $H_2$  calculés sont présentés au Tableau III.2.2.

On constate que sur l'ensemble des essais réalisés l'indice de fragilisation moyen est globalement inférieur à 2. Les résultats d'essais de disque sur les épaisseurs  $e_1$  et  $e_3$  semblaient indiquer une légère augmentation de l'indice de fragilisation avec l'épaisseur des disques. Cependant, la grande dispersion obtenue dans les résultats de l'épaisseur  $e_2$  ne permet pas de conclure sur l'influence de l'épaisseur.



**Figure III.2.16.** Evolution de l'indice de fragilisation moyen en fonction de l'épaisseur avec barres d'erreur représentant l'écart type des valeurs d'indice calculées.

**Tableau III.2.2.** Pressions de rupture moyennes et indice de fragilisation moyens calculés pour les différentes épaisseurs de disques.

Epaisseur (mm)	$P_{rupt}$ (MPa) $H_2$	$P_{rupt}$ (MPa) He	$I_{moy}$
0,75	$29,47 \pm 1,29$	$54,51 \pm 0,94$	$1,85 \pm 0,10$
1,2	$50,7 \pm 6,12$	$89,08 \pm 1,54$	$1,77 \pm 0,21$
1,5	$53,20 \pm 3,78$	$108,2 \pm 0,44$	$1,96 \pm 0,15$



### iii. Influence de la vitesse de montée en pression

L'une des causes de dispersion envisagée après la campagne d'essais à rupture est le contrôle de la vitesse de pressurisation. Il a en effet été constaté que la vitesse effective de pressurisation ( $v_e$ ) pouvait notablement différer de la vitesse de référence définie en amont des essais ( $v_p = 0,10$  MPa/min). Les pressions de rupture en fonction de la vitesse de pressurisation de l'essai sont présentées Figure III.2.17 pour les essais sous  $H_2$  et Figure III.2.18 pour les essais sous He.

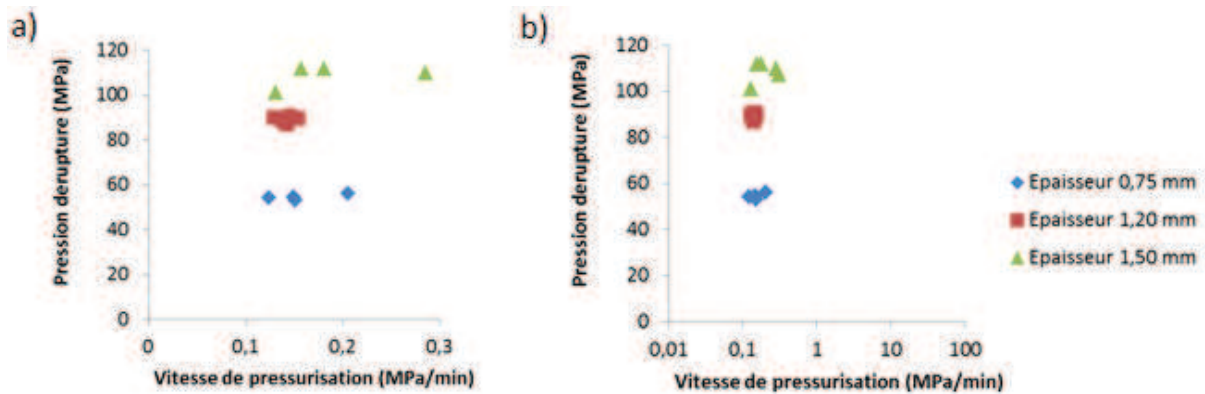


Figure III.2.17. Pression de rupture sous hélium en fonction de la vitesse de pressurisation en échelle a) linéaire et b) logarithmique.

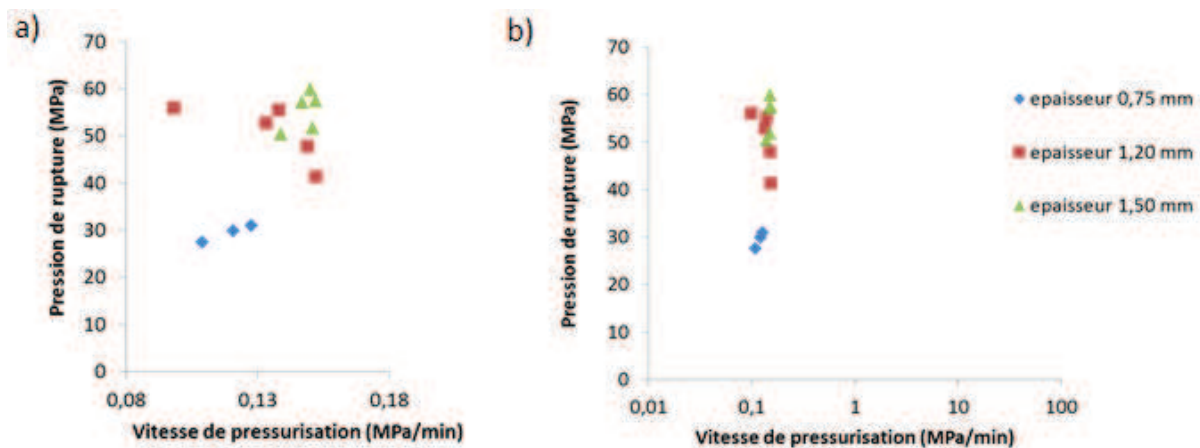


Figure III.2.18. Pression de rupture sous hydrogène en fonction de la vitesse de pressurisation en échelle a) linéaire et b) logarithmique.

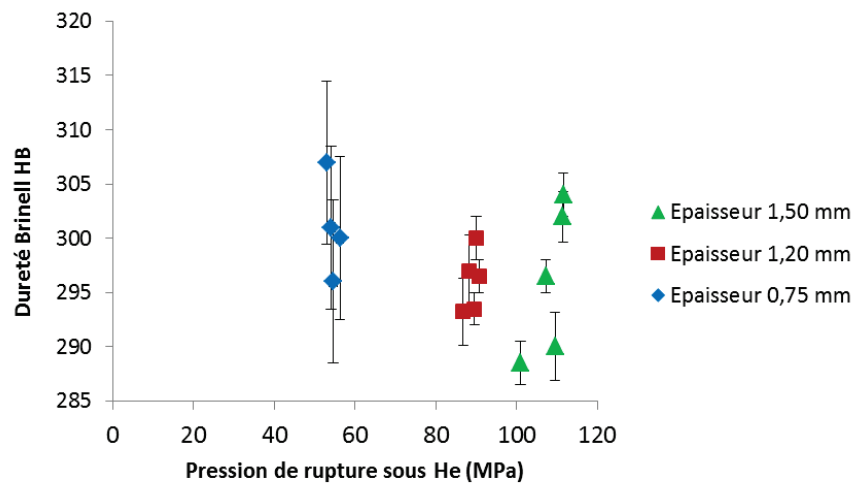
La pression de rupture est quasiment insensible à la vitesse effective de pressurisation pour les essais sous hélium, tandis que des variations sont notables pour les essais sous hydrogène, alors que l'amplitude de dispersion de  $v_e$  est nettement plus faible. Cependant les tendances sont contradictoires (augmentation de  $P_{rupt}$  pour  $e_1 = 0,75$  mm et  $e_3 = 1,5$  mm, diminution pour  $e_2 = 1,2$  mm) et, comme le montrent les Figure III.2.17 b) et 19 b), l'intervalle de vitesse exploré

est trop faible pour pouvoir conclure sur la sensibilité à la vitesse de pressurisation, qui nécessiterait des variations de vitesse sur plusieurs décades.

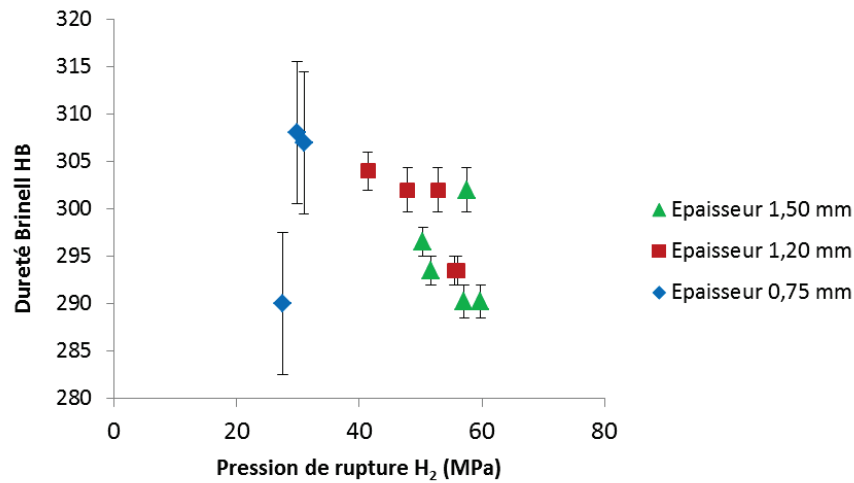
#### **iv. Influence de la dureté Brinell sur la pression de rupture**

Les Figure III.2.19 et Figure III.2.20 présentent l'évolution de la pression de rupture sous He et sous H<sub>2</sub> en fonction de la dureté Brinell moyenne pour les trois épaisseurs de disque testés. On constate que pour les essais sous He la variation de dureté Brinell n'influence pas la pression de rupture pour les épaisseurs e<sub>1</sub> et e<sub>2</sub>, tandis que pour l'épaisseur e<sub>3</sub> la pression de rupture tend à augmenter légèrement quand la dureté Brinell augmente.

Pour les essais sous hydrogène, l'effet de la dureté Brinell est faible sur l'épaisseur e<sub>1</sub>, tandis qu'une tendance à l'augmentation de la pression de rupture avec la diminution de la dureté est observée pour les plus fortes épaisseurs, et de manière plus marquée pour l'épaisseur e<sub>2</sub>. Ces résultats suggèrent que sur les fortes épaisseurs de disque l'effet de la dureté Brinell devient significatif sur la fragilisation par l'hydrogène, ce qui peut être en partie causé par les niveaux de pression d'hydrogène rencontrés au cours de ces essais.



**Figure III.2.19.** Evolution de la pression de rupture sous He en fonction de la dureté moyenne des disques avec barre d'erreur pour les trois épaisseurs de disque.



**Figure III.2.20.** Evolution de la pression de rupture sous H<sub>2</sub> en fonction de la dureté moyenne des disques avec barre d'erreur pour les trois épaisseurs de disque.

### III.2.b. Courbes flèche-pression

L'instrumentation permettant d'accéder à l'évolution de la flèche du disque au cours d'un essai de disque, il a été possible de mesurer les courbes flèche-pression lors de la campagne d'essai de disque à rupture. Cependant pour des raisons de disponibilités du capteur, il n'a pas été possible d'effectuer les mesures pour tous les essais, les essais mesurés sont :

- essais sous H<sub>2</sub> :
  - épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm : 1 essai pour le grade de polissage SiC 220, et tous les essais pour les grades de polissage SiC 800 et SiC 4000 ;
  - épaisseurs  $e_2 = 1,20$  mm : tous les essais ;
  - épaisseurs  $e_3 = 1,50$  mm : tous les essais ;
- essais sous He :
  - épaisseurs  $e_2 = 1,20$  mm : tous les essais ;
  - épaisseurs  $e_3 = 1,50$  mm : tous les essais.

#### *i. Influence de l'épaisseur*

Les courbes obtenues sous H<sub>2</sub> pour les disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm sont présentées à la Figure III.2.21. La couleur des courbes renvoie au grade de polissage correspondant : vert pour le grade SiC 220, nuances de rouge pour le grade SiC 800 et nuances de bleu pour le grade SiC 4000.

Les résultats pour les épaisseurs  $e_2 = 1,20$  mm et  $e_3 = 1,50$  mm sont données respectivement aux Figure III.2.22 et Figure III.2.23 et montrent une dispersion dans les valeurs de flèches, dispersion définie comme la différence de flèche entre la courbe la plus haute et la courbe la plus basse aux pressions de rupture moyenne expérimentale pour chaque épaisseur de disque (voir Tableau III.2.2). On remarque, pour les épaisseurs  $e_2 = 1,20$  mm et  $e_3 = 1,50$  mm que les courbes



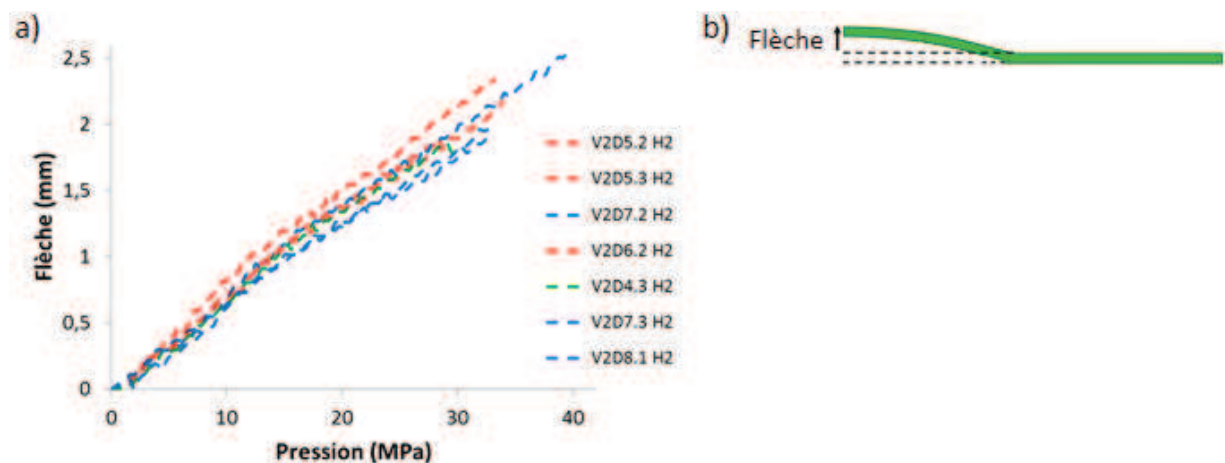
flèche-pression présentent des formes similaires sous He et sous H<sub>2</sub>, bien que la rupture soit plus précoce sous H<sub>2</sub>. A pression donnée, les valeurs de flèche sont légèrement plus importantes sous H<sub>2</sub> que sous He.

Le Tableau III.2.3 présente les valeurs de dispersion de flèche calculées. Les résultats montrent que sous H<sub>2</sub> la dispersion la plus importante est obtenue pour l'épaisseur e<sub>1</sub> = 0,75 mm et que les dispersions pour les épaisseurs e<sub>2</sub> = 1,20 mm et e<sub>3</sub> = 1,50 mm sont voisines. Les disques d'épaisseurs e<sub>2</sub> et e<sub>3</sub> testés présentant tous le même état de surface, il est possible que l'une des causes de la dispersion obtenue pour l'épaisseur e<sub>1</sub> soit le polissage mécanique effectué avant l'essai.

Sous He, la dispersion des valeurs de flèche est plus faible pour l'épaisseur e<sub>2</sub> que pour l'épaisseur e<sub>3</sub>. On remarque également que pour l'épaisseur e<sub>2</sub>, la dispersion sous He est inférieure à la dispersion sous H<sub>2</sub> alors que pour l'épaisseur e<sub>3</sub> on observe la tendance inverse. Il est à noter que des pressions de l'ordre de 100 MPa sont atteintes avec l'épaisseur e<sub>3</sub> sous He, alors que le banc d'essai n'était à la base pas prévu pour de telles pressions.

**Tableau III.2.3.** Calculs de la dispersion des courbes flèche-pression pour les trois épaisseurs de disque testés sous He et sous H<sub>2</sub>.

Gaz	Epaisseur (mm)	Dispersion (%)
H <sub>2</sub>	0,75	19,9
	1,20	5,1
	1,50	7,8
He	1,20	3,5
	1,50	9,5



**Figure III.2.21.** a) Comparaison des courbes flèche-pression sous H<sub>2</sub> des disques d'épaisseur e<sub>1</sub> = 0,75 mm, la couleur correspondant au grade de polissage : vert pour le grade SiC 220, rouge pour le grade SiC 800 et bleu pour le grade SiC 4000 et b) schéma illustrant le principe de la mesure de flèche.

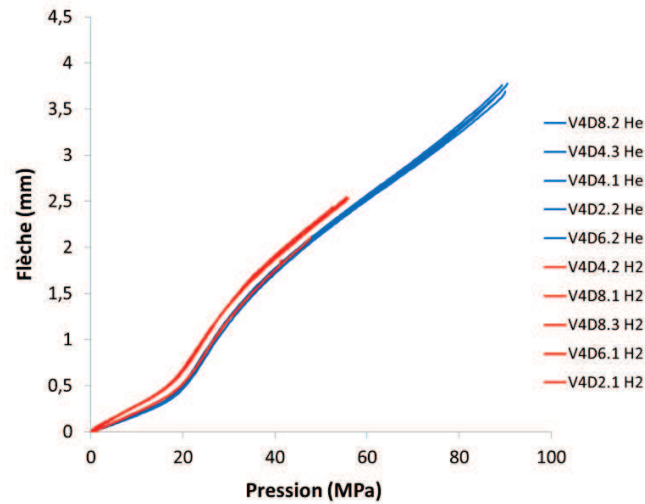


Figure III.2.22. Comparaison des courbes flèche-pression obtenues sous H<sub>2</sub> et sous He pour les disques d'épaisseur  $e_2 = 1,20$  mm.

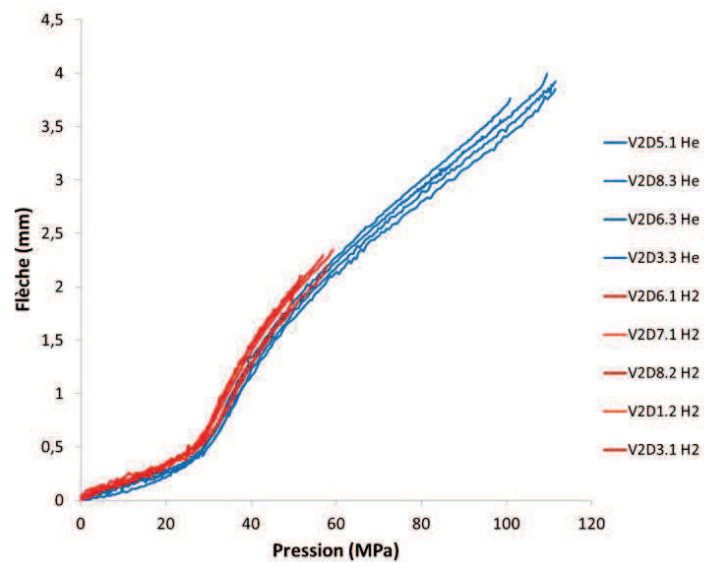


Figure III.2.23. Comparaison des courbes flèche-pression obtenues sous H<sub>2</sub> et sous He pour les disques d'épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm.

## ii. Influence de la dureté Brinell

Afin d'estimer l'effet de variation de dureté lié à l'hétérogénéité des propriétés mécaniques de l'ensemble des disques sur les courbes flèche-pression, et en supposant qu'à pression donnée, l'augmentation de dureté du matériau conduit à une diminution de la flèche au cours de l'essai de disque, les valeurs de flèche ont été multipliées par un coefficient correctif empirique défini par  $C(e) = HB_{\text{disque}}/HB_{\text{moy}}$  où  $HB_{\text{disque}}$  correspond à la dureté Brinell du disque considéré et  $HB_{\text{moy}}$  à la dureté Brinell moyenne calculée sur l'ensemble des disques pour l'épaisseur  $e$ .

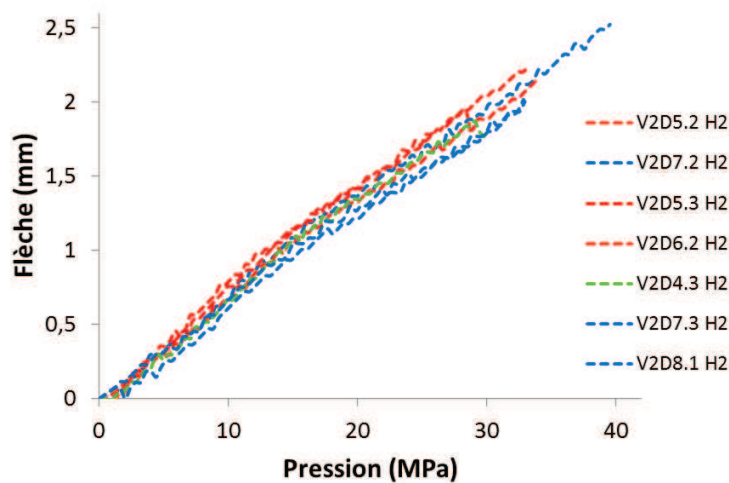
Les courbes flèche-pression ainsi corrigées sont présentées aux Figures III.2.24 à III.2.26. Globalement, la dispersion entre les différentes courbes est réduite, comme montré au Tableau III.2.4, sauf dans le cas des disques d'épaisseurs  $e_3 = 1,50$  mm testés sous  $H_2$  où la dispersion augmente légèrement.

Sous He, l'application du coefficient a permis de réduire de moitié les valeurs de dispersions pour les épaisseurs  $e_2 = 1,20$  mm et  $e_3 = 1,50$  mm. Ces résultats suggèrent qu'une partie de la dispersion est liée aux variations de caractéristiques mécaniques des disques selon leur lieu de prélèvement dans la bouteille.

**Tableau III.2.4.** Calculs des dispersions des courbes flèche-pression pour les trois épaisseurs de disque testés sous He et sous H2 après correction des courbes.

Gaz	Epaisseur (mm)	Dispersion (%)
$H_2$	0,75	11,3
	1,20	4,4
	1,50	10,7
He	1,20	1,3
	1,50	4,1

Les données obtenues à partir des courbes flèche-pression sur les disques d'épaisseur  $e_2 = 1,20$  mm et  $e_3 = 1,50$  mm montrent que la présence de  $H_2$  rend la rupture plus précoce que sous He sans pour autant modifier le comportement global du disque et ce même en présence de forte pression d'hydrogène (de l'ordre de 50 MPa).



**Figure III.2.24.** Courbes flèche-pression sous  $H_2$  corrigées avec le coefficient  $C(e)$  des disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm. Le code couleur utilisé est celui de la Figure III.2.21.

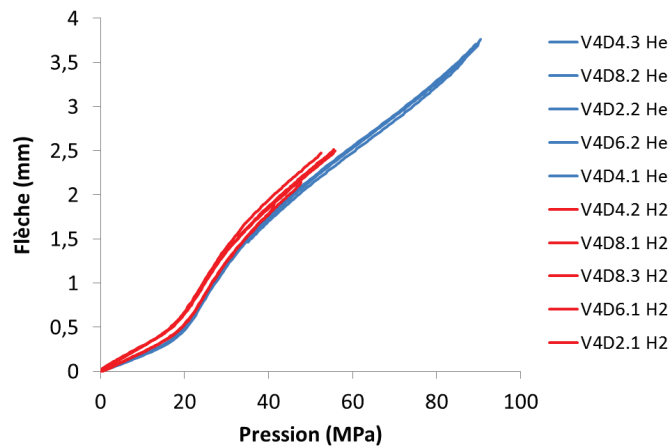


Figure III.2.25. Courbes flèche-pression sous H<sub>2</sub> et sous He corrigées avec le coefficient  $C(e)$  pour les disques d'épaisseur  $e_2 = 1,20$  mm.

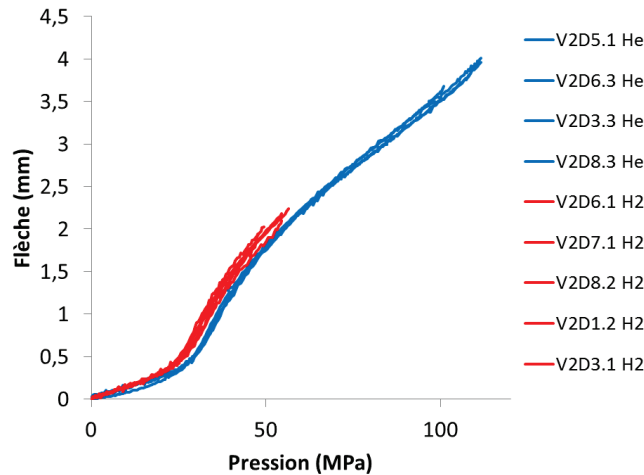


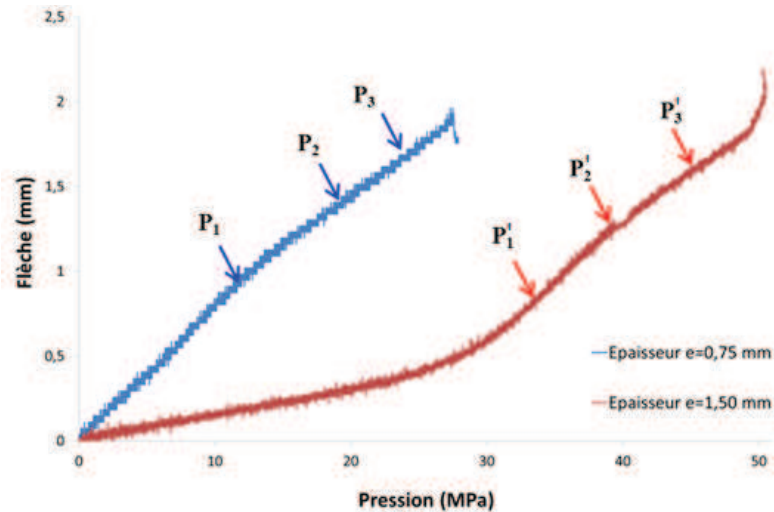
Figure III.2.26. Courbes flèche-pression sous H<sub>2</sub> et sous He corrigées avec le coefficient  $C(e)$  pour les disques d'épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm.

### iii. Choix des pressions d'arrêt

Les essais de disques interrompus ont été réalisés sur les épaisseurs de disque  $e_1 = 0,75$  mm et  $e_3 = 1,50$  mm. La sélection des pressions d'arrêt s'est effectuée en se basant sur les courbes-flèche-pression obtenues lors de la campagne d'essais à rupture (Tableau III.2.5 et Figure III.2.27).

**Tableau III.2.5.** Plan d'expérience des essais de disque interrompus.

Epaisseur (mm)	Pressions d'arrêt (MPa)					
	He			H <sub>2</sub>		
0,75	13	20	27	13	20	27
1,50	35	40	47	35	40	47



**Figure III.2.27.** Choix des pressions d'arrêts sur les courbes expérimentales obtenues sous H<sub>2</sub> : flèches bleues pour l'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm ; flèches rouges pour l'épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm.

### III.2.c. Mesures de profils

Des mesures de profilométrie ont été réalisées à Supmeca à Saint-Ouen grâce à la collaboration du LISSMA (I. Lemaire-Caron) avec le LSPM. La profilométrie consiste à mesurer le relief d'une surface afin d'en évaluer la rugosité ou la microgéométrie, elle peut être mesurée par des méthodes dites « avec contact » à l'aide d'appareillage à pointe (comme dans le cas des rugosimètres) ou par des méthodes dites « sans contact » par méthode optique.

L'appareillage utilisé pour les mesures de profil est un Micromesure 2 de la société Stil ©, profilomètre optique utilisant la technique de l'imagerie confocale chromatique dont le principe est présenté à la Figure III.2.28 [2].

Le point source (W) émet une lumière blanche qui est décomposé en différentes longueurs d'ondes par l'objectif chromatique (L). Ces différentes longueurs d'ondes sont focalisées à différentes profondeurs sur l'échantillon. La lumière rétrodiffusée traverse l'objectif dans le sens inverse et est filtrée par un trou P qui ne laisse passer qu'une longueur d'onde ( $\lambda_M$ ). Cette longueur d'onde est alors en relation directe avec la position de l'échantillon.

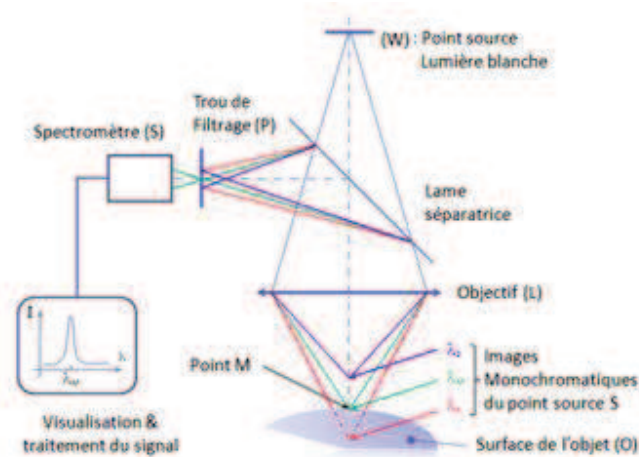


Figure III.2.28. Principe de la profilométrie sans contact à imagerie confocale chromatique [2].

Les mesures sont réalisées sur les faces inférieures et supérieures des disques (voir paragraphe IV.1.c, pour les comparaisons avec les simulations), les faces supérieures étant non soumise au gaz, après essais interrompus avec un « crayon optique » autorisant une amplitude verticale de mesure de  $3500 \mu\text{m}$  avec une précision de  $1 \mu\text{m}$ . Les mesures de profil des disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75 \text{ mm}$  montrent que d'une part l'augmentation de la flèche du disque est cohérente avec l'augmentation de la pression d'arrêt (Figure III.2.29) et que d'autre part les géométries macroscopiques des disques déformés sous He et sous  $\text{H}_2$  sont voisines.

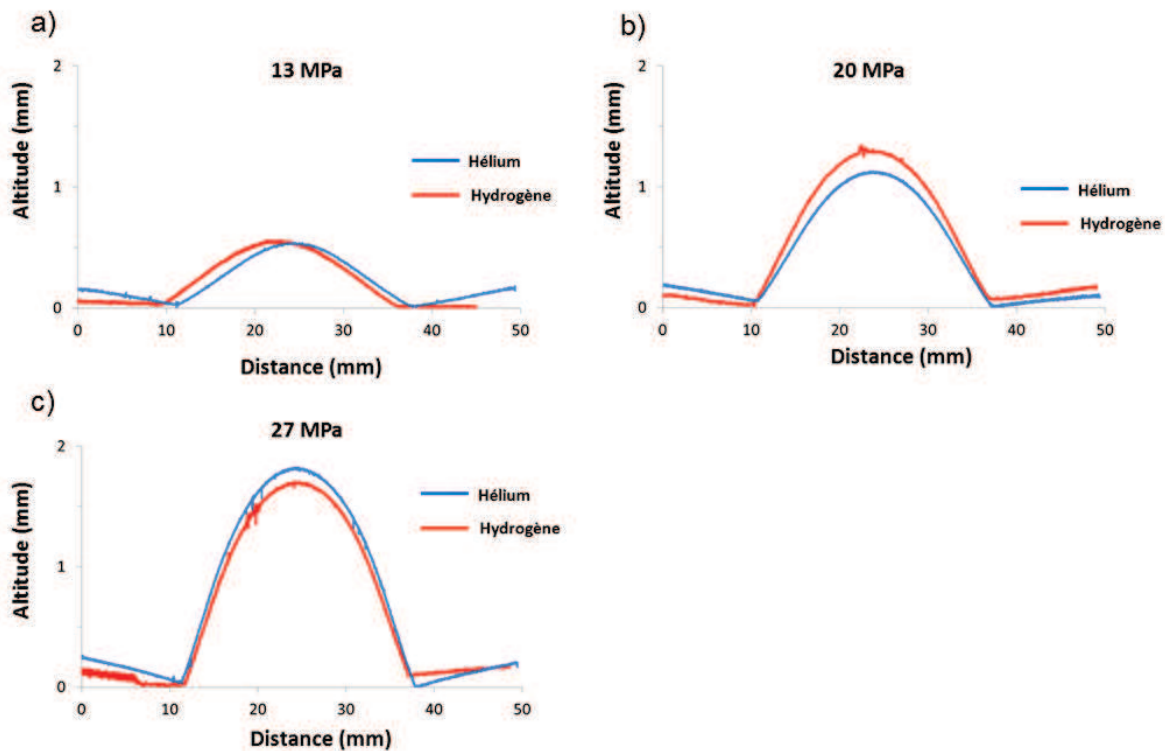


Figure III.2.29. Profil des faces supérieures des disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75 \text{ mm}$  déformés sous He et sous  $\text{H}_2$  pour la pression : a)  $P_1 = 13 \text{ MPa}$ , b)  $P_2 = 20 \text{ MPa}$  et c)  $P_3 = 27 \text{ MPa}$ .



En revanche les mesures de profil réalisées sur les disques d'épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm présentent des différences entre les disques testés sous He et ceux testés sous  $H_2$  (Figure III.2.30). Ainsi à la pression d'arrêt  $P'_1 = 35$  MPa la flèche obtenue est plus importante sous He que sous  $H_2$  et cette tendance s'inverse pour les pressions d'arrêt  $P'_2 = 40$  MPa et  $P'_3 = 47$  MPa. De plus dans le cas des disques testés sous He, la flèche est plus importante pour la pression d'arrêt  $P'_1 = 35$  MPa que pour la pression  $P'_2 = 40$  MPa.

Les flèches obtenues par mesures de profil et celles mesurées au cours de l'essai de disque sont comparées à la Figure III.2.31. On remarque que les deux séries de points présentent la même distribution, indiquant que les dispersions observées sur les mesures de profil sont dues à l'essai de disque. Le disque utilisé pour l'essai arrêté sous He à  $P'_2 = 40$  MPa étant issu de la génératrice n°6, génératrice présentant les valeurs maximales de dureté Brinell dans le fût de la bouteille (voir paragraphe III.1.d.iii.), il apparaît cohérent que ce disque présente une flèche plus faible que les autres disques dans la gamme de pression considérée. De plus on note une différence presque constante de l'ordre de 0,3 mm entre la flèche maximale mesurée au cours de l'essai de disque et la flèche obtenue par mesure de profil. Cet écart peut être en partie attribué au retour élastique du disque en fin d'essai lors de la dépressurisation et ainsi qu'au retrait des outils de maintien.

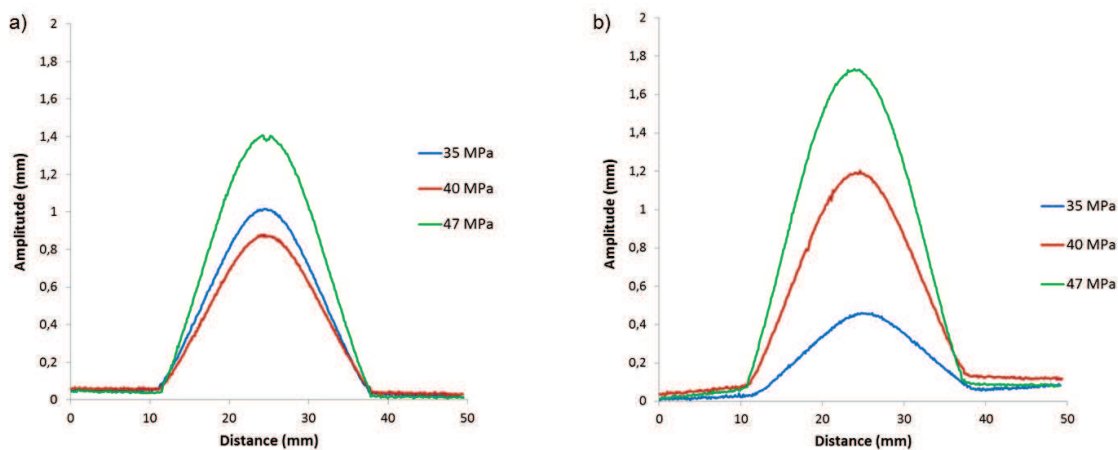


Figure III.2.30. Profil des faces supérieures des disques  $e_3 = 1,50$  mm déformés aux différentes pressions d'arrêt : a) sous He et b) sous  $H_2$ .

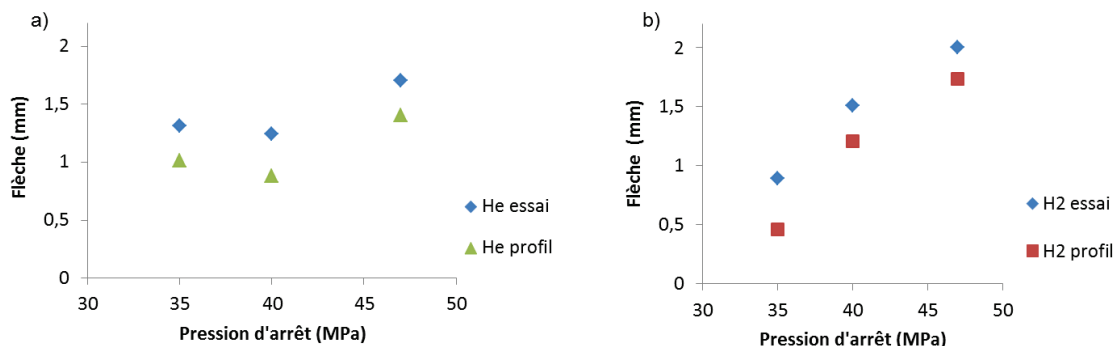


Figure III.2.31. Comparaison des flèches mesurées au cours de l'essai et celles obtenues par mesures de profil pour les disques d'épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm : a) sous He et b) sous  $H_2$ .

### III.3 Analyses MEB-EBSD de l'endommagement

#### III.3.a. Mécanismes de fissuration sous hélium

Tous les essais à rupture sous He se sont soldés par une rupture du disque par « décollage » total, donnant ainsi accès au faciès de rupture. Le disque retenu pour l'observation du faciès de rupture sous He est le disque VID5.2 d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  MPa pour lequel la valeur de  $v_e$  est la plus proche de celles des essais sous  $H_2$  ( $v_e = 0,12$  MPa/min). Les observations de la surface de rupture du disque sont présentées à la Figure III.3.1 où l'on peut voir de nombreuses cupules, typiques d'une rupture ductile, ce qui est cohérent avec la neutralité de l'hélium gazeux.

De plus, il a été possible d'étudier la fissuration sous He dans l'épaisseur d'un disque grâce à un essai n'ayant pas été jusqu'à la rupture (voir paragraphe III.2.a.ii.). L'observation dans une coupe radiale du disque (telle que le rayon du disque  $r_d$  est colinéaire à l'axe  $Z_B$  de la bouteille) montre (Figure III.3.2) que la fissuration macroscopique forme un angle  $\alpha$  d'environ  $45^\circ$  à l'axe radial du disque. A plus fort grandissement, la microfissuration s'appuie sur de nombreuses cavités constituées de pores et de décohésions de carbure.

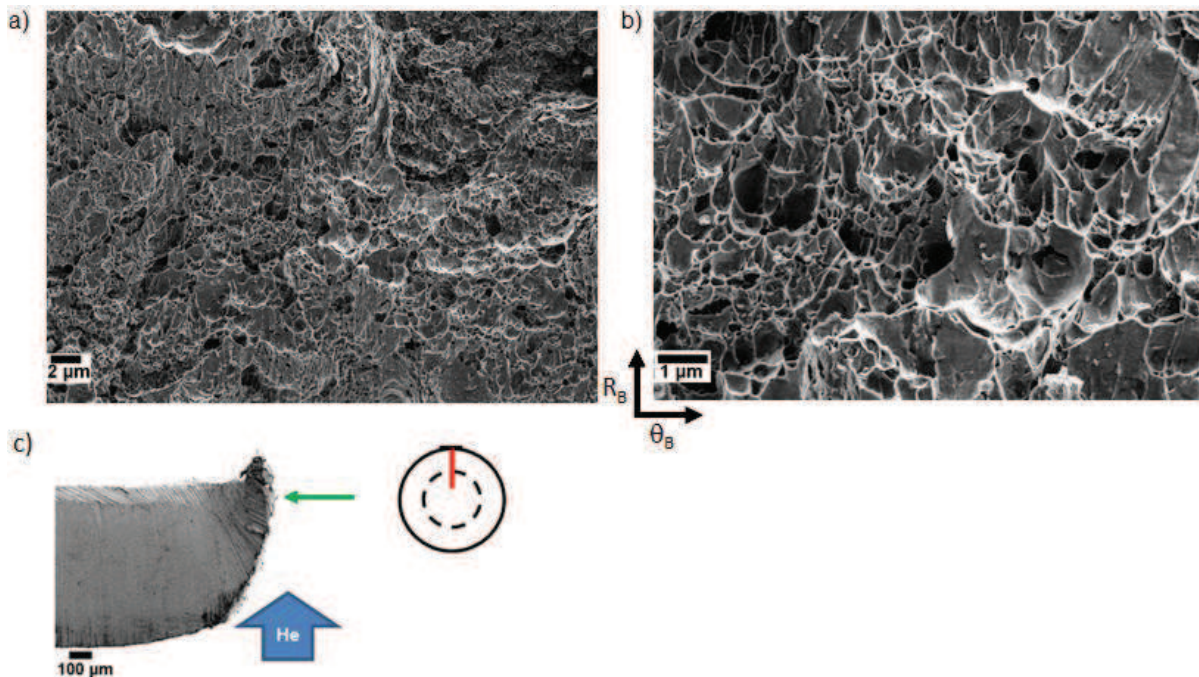
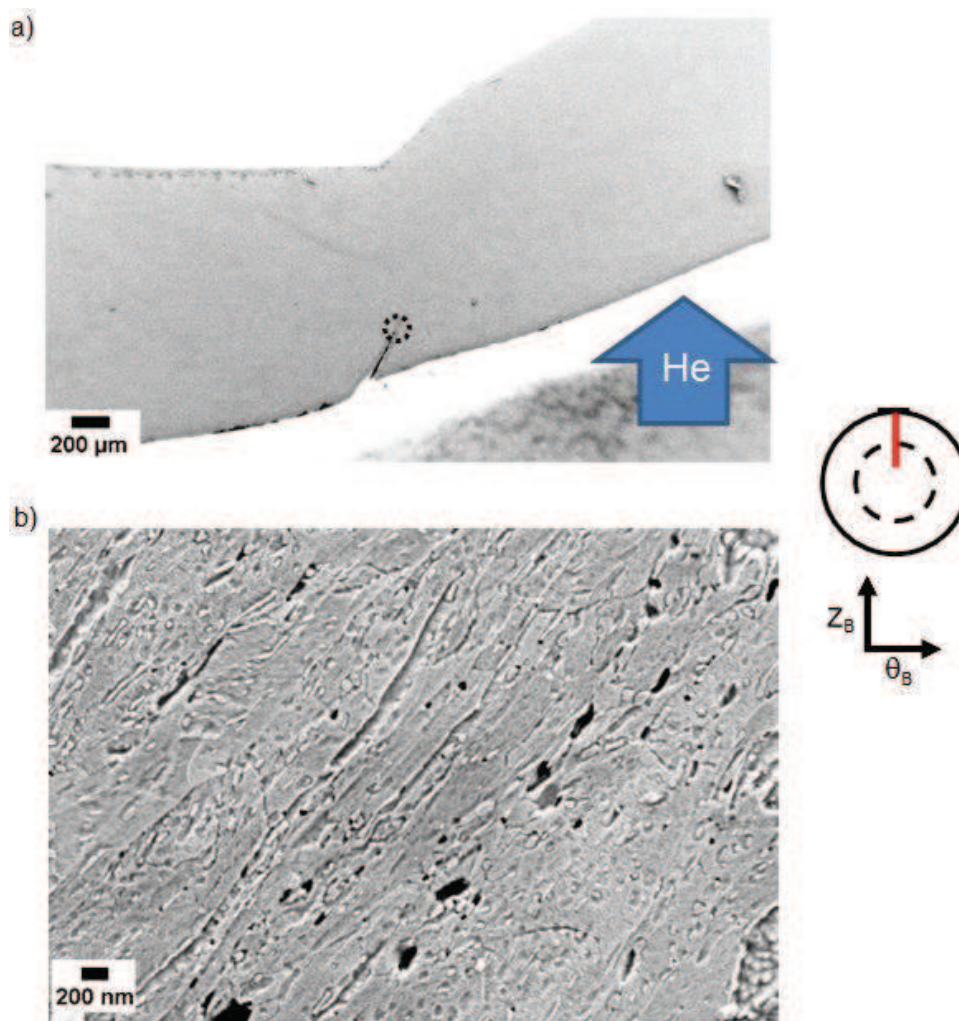


Figure III.3.1. Aspect du faciès de rupture du disque VID5.2 rompu sous He : a) aspect général et b) vue détaillée. c) la flèche verte indique la localisation du point d'observation.



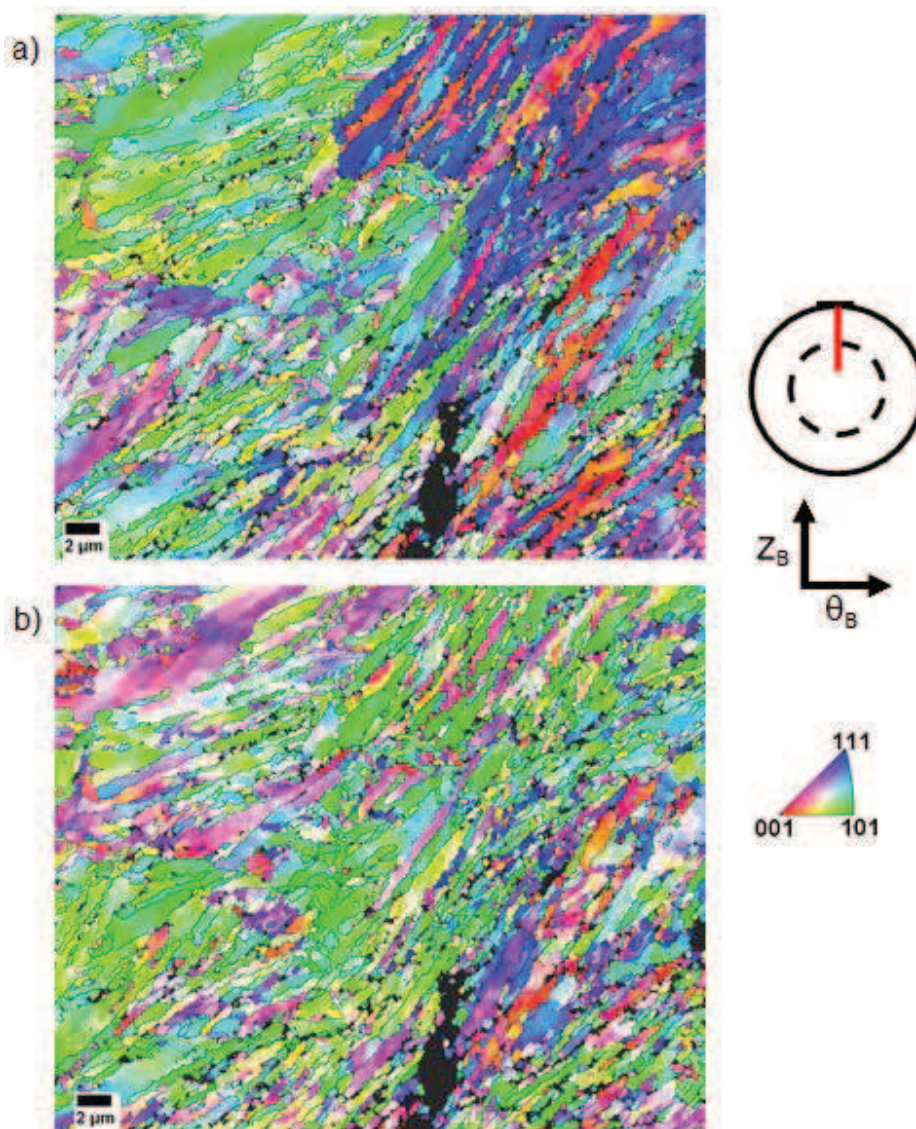
**Figure III.3.2.** Fissuration dans le disque V2D1.3 d'épaisseur  $e_3 = 1,50$  mm dans une section radiale où  $r_d$  est colinéaire à  $Z_B$  : a) la fissuration dans l'épaisseur est inclinée de  $\alpha = 45^\circ$  par rapport à l'axe radial disque et b) détails de la zone entourée en pointillés où de nombreuses cavités sont visibles.

La réalisation d'analyses en EBSD en pointe de fissure sur une zone  $27,5 \mu\text{m} \times 27,5 \mu\text{m}$  avec un pas de  $0,6 \mu\text{m}$  a permis d'obtenir les cartographies de figures de pôles inverses de la Figure III.3.3. Elles mettent clairement en évidence le changement de morphologie de la microstructure due à la déformation plastique importante dans cette zone. Ce changement se caractérise par des lattes orientées dans la direction de sollicitation et des désorientations interlattes. Les nombreux points non indexés correspondent à des trous, répartis dans toute la zone, en cohérence avec de l'endommagement de type ductile, et avec le faciès de rupture de type ductile observé lors des fractographies (voir paragraphe III.3.a.i).

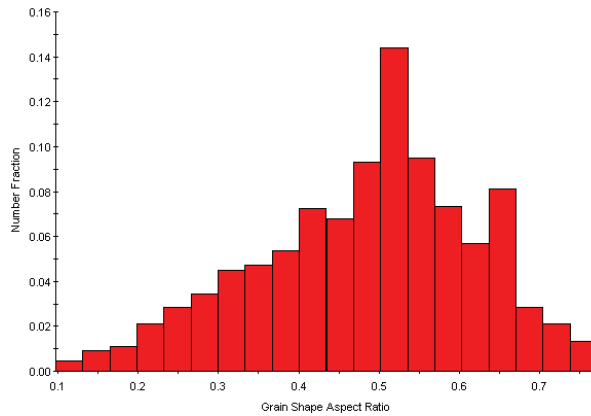
La Figure III.3.4 présente le facteur de forme  $r/R$  calculé dans la zone analysée en considérant que les lattes sont des ellipses. On remarque que par rapport l'état initial (voir paragraphe II.3.d.ii.) la distribution du facteur forme est plus étalée et fait apparaître une part plus importante de faible valeurs, traduisant la présence de lattes très allongées. Typiquement dans le cas de la



microstructure déformée considérée, l'épaisseur et la longueur des lattes sont respectivement  $r_{\text{moyen}} = 1,00 \mu\text{m} \pm 0,35$  et  $R_{\text{moyen}} = 5,58 \mu\text{m} \pm 2,11$ .



**Figure III.3.3.** Cartographies de figures de pôles inverses de la zone analysée : a) IPF selon l'axe  $\theta_B$  ; b) IPF selon l'axe  $Z_B$ .



**Figure III.3.4.** Distribution du facteur de forme des grains, un joint de grain étant défini par une désorientation supérieure à  $15^\circ$ .

### III.3.b. Mécanismes de fissuration sous hydrogène

#### *i. Faciès de rupture*

Au cours des essais de disque à rupture sous  $H_2$  seuls deux disques ont rompu par décalottage, il s'agit des disques V2D3.2 poli au grade SiC 220 (décalottage partiel) et V2D7.2 poli au grade SiC 4000 (décalottage total) d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm. Les autres disques sont restés entiers après l'essai, bien que macroscopiquement fissurés.

L'observation du faciès de rupture dans l'épaisseur du disque V2D7.2 (épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm) selon une section radiale où l'axe  $r_d$  du disque est colinéaire à l'axe  $Z_B$  de la bouteille montre que l'amorçage au niveau de la face inférieure du disque est de type fragile sous  $H_2$  (Figure III.3.5) sur une courte distance ( $\sim 1/10^{\text{ème}}$  de l'épaisseur du disque), puis apparaît une zone de transition fragile-ductile sur quelques  $\mu\text{m}$  (Figure III.3.6). La rupture devient ensuite ductile dans le reste de l'épaisseur du disque (Figure III.3.7) ce qui a pu être causé par l'arrachage final.

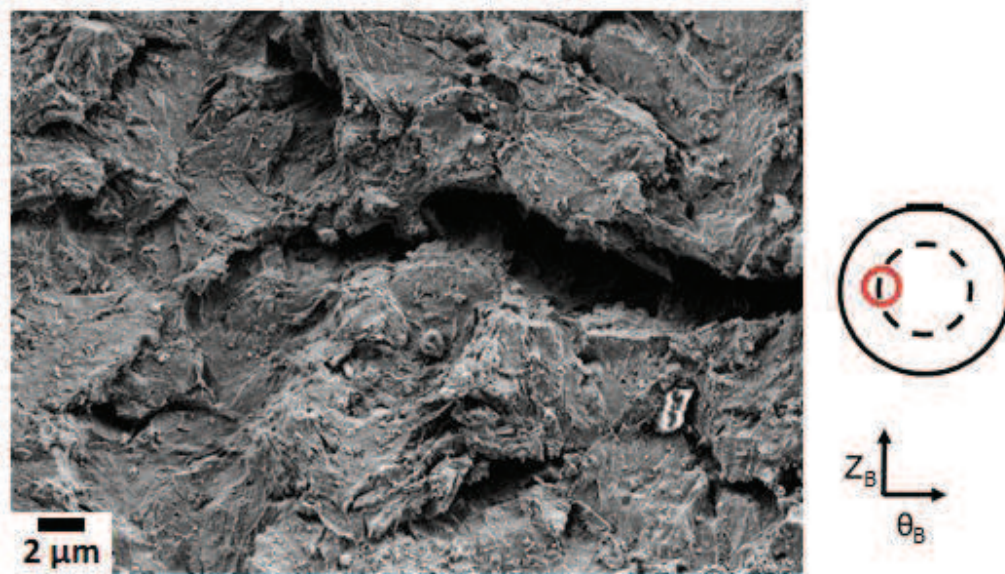


Figure III.3.5. Aspect du faciès de rupture sous  $H_2$  dans la zone de rupture fragile au niveau de la face inférieure du disque. Le cercle rouge sur la représentation schématique du disque indique le lieu d'observation du faciès de rupture.

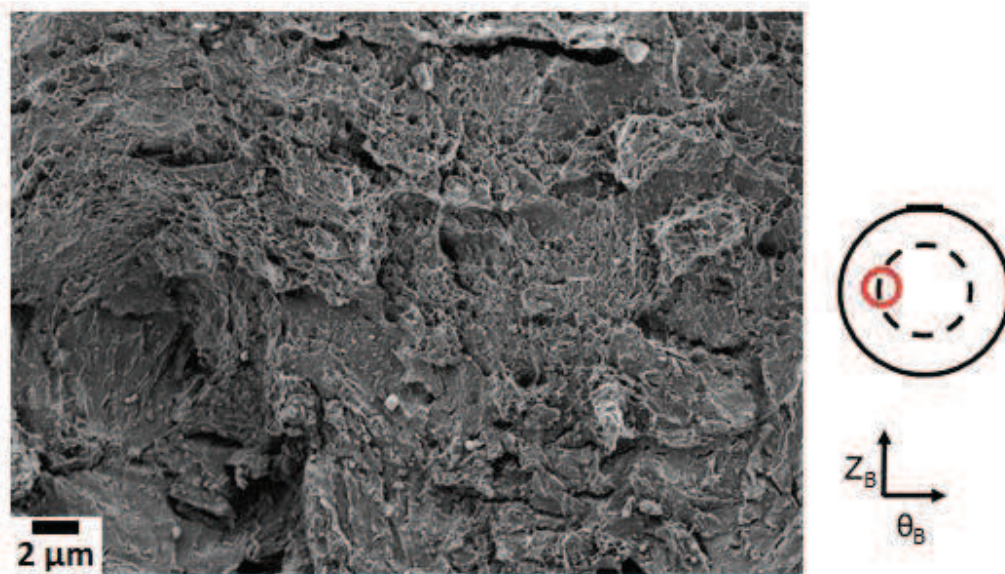


Figure III.3.6. Aspect du faciès de rupture dans la zone de transition dans l'épaisseur.



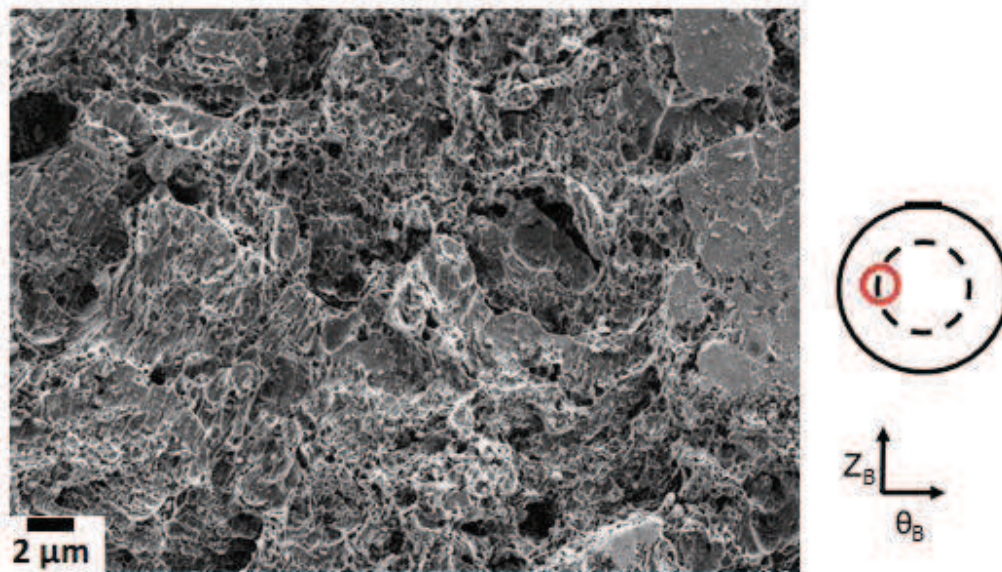


Figure III.3.7. Aspect du faciès de rupture dans la zone de rupture ductile au niveau de la face supérieure du disque.

### ii. Mécanismes de rupture sous $H_2$

Les observations MEB-EBSD sont réalisées dans des sections radiales des disques l'axe  $r_d$  du disque est colinéaire à l'axe  $Z_B$  de la bouteille. Les observations menées dans une section radiale du disque V2D1.1 d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm (état brut) montrent que la fissuration est globalement perpendiculaire au rayon du disque, ce qui correspond à une ouverture macroscopiquement en mode I. Cependant, la fissure est ramifiée en de nombreuses microfissures qui semblent suivre les carbures présents entre et dans les lattes de la microstructure (Figure III.3.8 à 10).

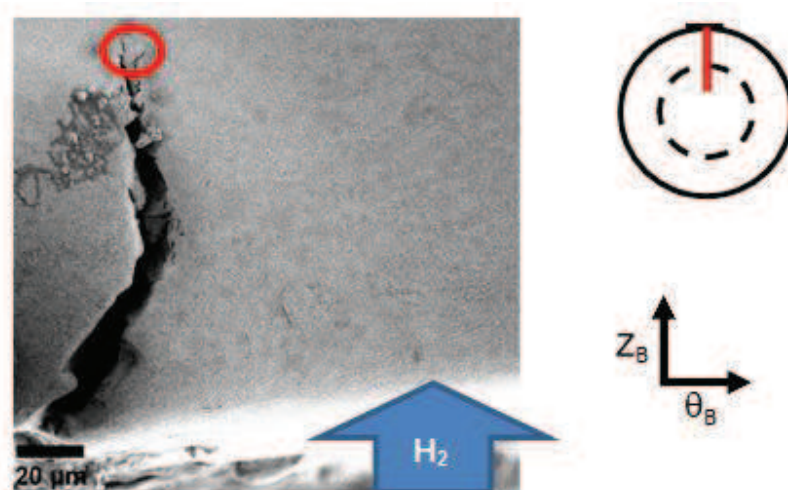
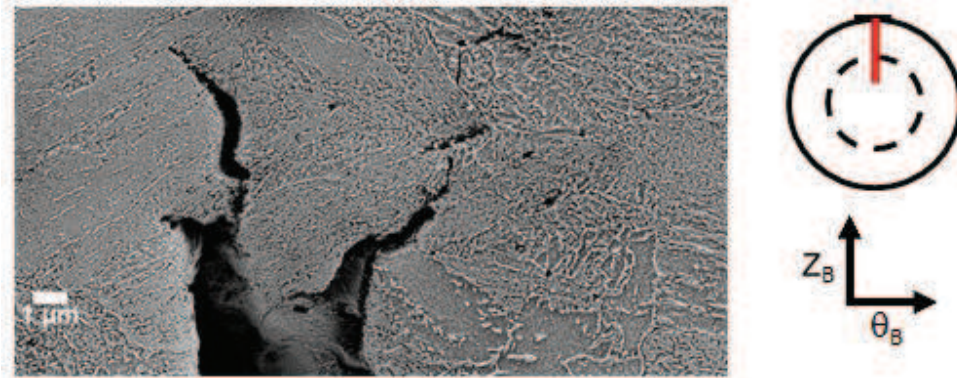
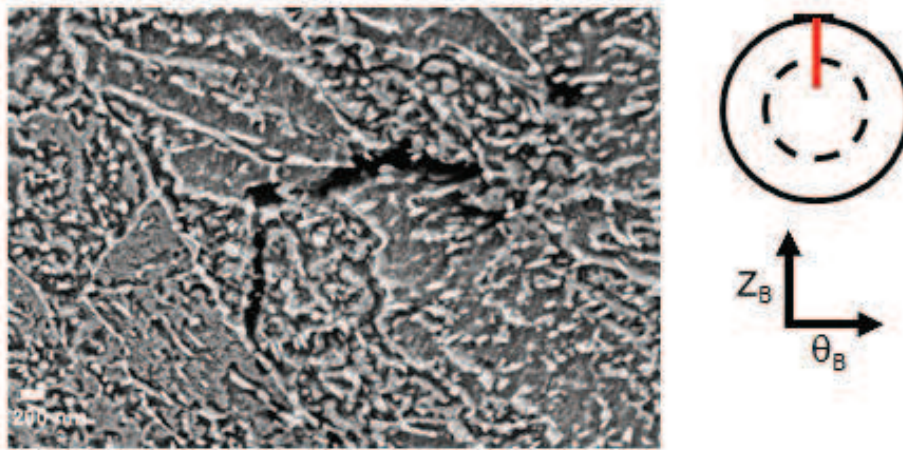


Figure III.3.8. Ramification de la fissuration dans une section radiale où  $r_d$  est colinéaire à  $Z_B$ .



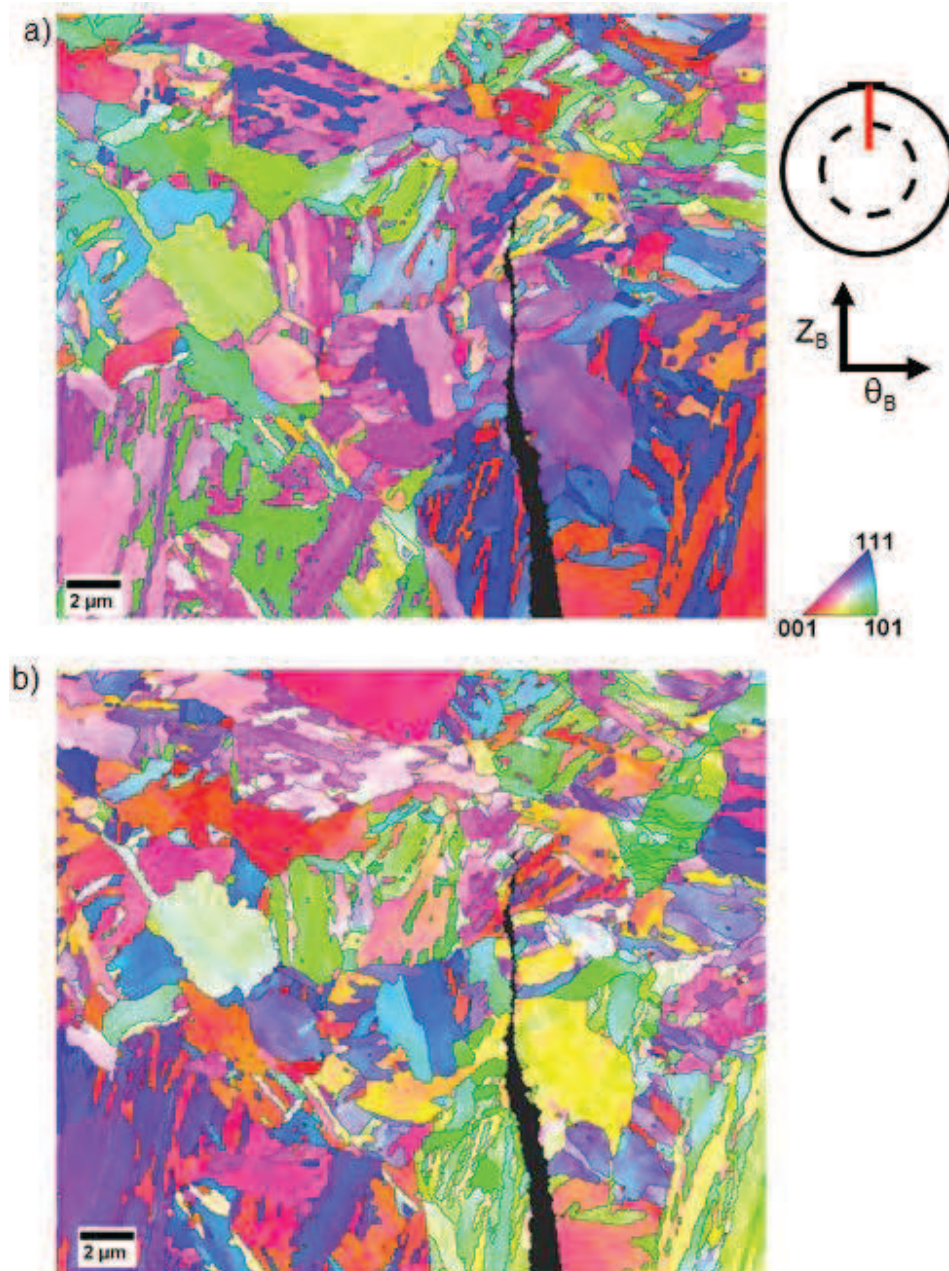
**Figure III.3.9.** Agrandissement de la zone entourée en rouge à la Figure III.3.8.



**Figure III.3.10.** Détails de la microfissuration.

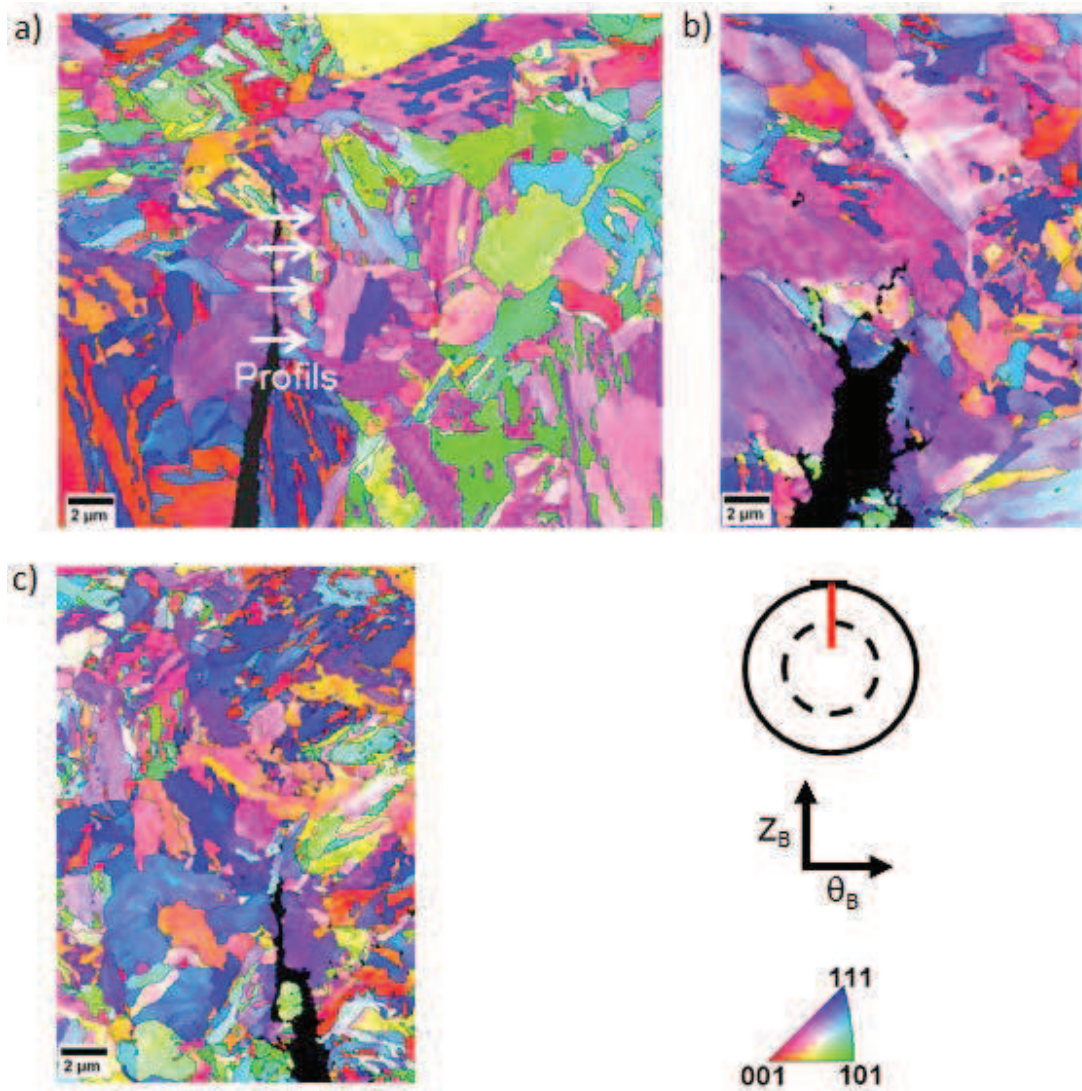
Des analyses EBSD ont été effectuées sur une zone  $27,5 \mu\text{m} \times 27,5 \mu\text{m}$  avec un pas de  $0,6 \mu\text{m}$  dans une section radiale du disque V2D7.3 d'épaisseur  $e_1 = 0,75 \text{ mm}$  poli au grade 4000 et rompu sous hydrogène. Les cartographies de figures de pôles inverses obtenues (Figure III.3.11) montrent que la microstructure après essai diffère peu de la microstructure initiale en dehors des fissures. Ceci témoigne du caractère fragilisant de l'hydrogène conduisant à la propagation rapide de la fissuration dans une microstructure faiblement déformée.



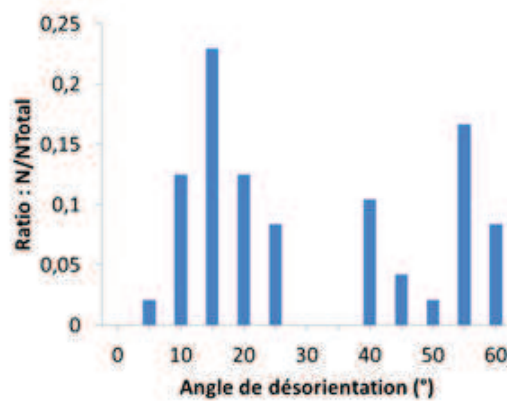


**Figure III.3.11.** Cartographies de figures de pôles inverses de la zone analysée : a) IPF selon l'axe  $\theta_B$  ; b) IPF selon l'axe  $Z_B$ .

L'utilisation des profils de désorientation, illustré à la Figure III.3.12, de part et d'autre des pointes de fissure de plusieurs disques a permis de mesurer les désorientations aux bords de la fissure. On remarque que les valeurs de désorientation mesurées sont majoritairement supérieures ou égales à  $15^\circ$  (Figure III.3.13) ce qui correspond à une fissuration de nature intergranulaire.



**Figure III.3.12.** Cartographies de figures de pôles inverses de la direction  $\theta_B$  : a) disque V2D7.3 d'épaisseur  $e_1$  et illustration des profils de désorientation, b) disque V2D6.2 d'épaisseur  $e_1$  et c) disque V2D6.1 d'épaisseur  $e_3$ .



**Figure III.3.13.** Fréquence d'apparitions des angles de désorientations rencontrés de part et d'autre des fissures.

Par ailleurs, la comparaison de la distribution du « kernel moyen de désorientation » entre les cartographies EBSD sous He et sous H<sub>2</sub> (Figure III.3.14), montre que la distribution des angles de désorientation est décalée vers les angles plus importants dans le cas de l'hélium, ce qui est cohérent avec une plus grande déformation plastique (voir Figure III.3.3).

Le « kernel moyen de désorientation » représente en chaque point la moyenne des désorientations des points adjacents (premiers points voisins dans le cas présent avec angle maximal de désorientation de 5°). Il est utilisé pour étudier qualitativement la répartition des désorientations dans une cartographie EBSD, dont l'évolution au cours de la déformation plastique est liée aux mécanismes de déformation du réseau cristallin [3].

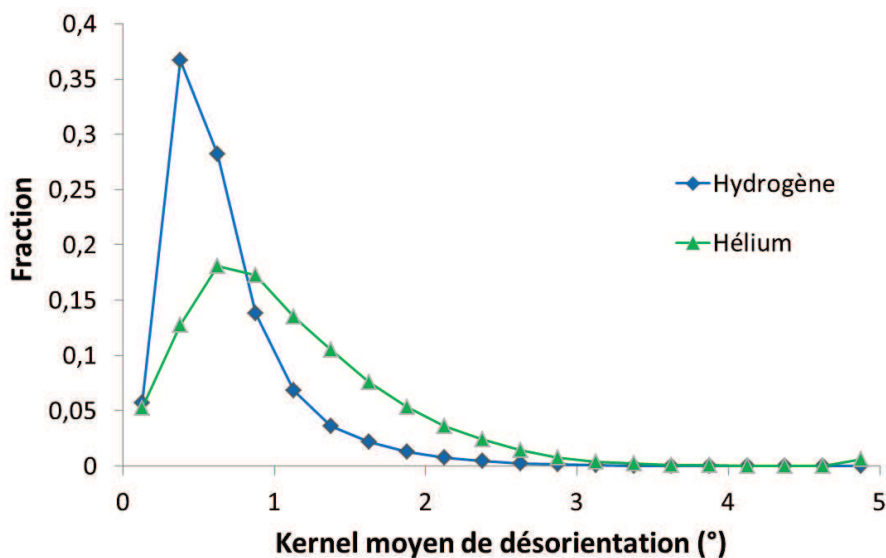


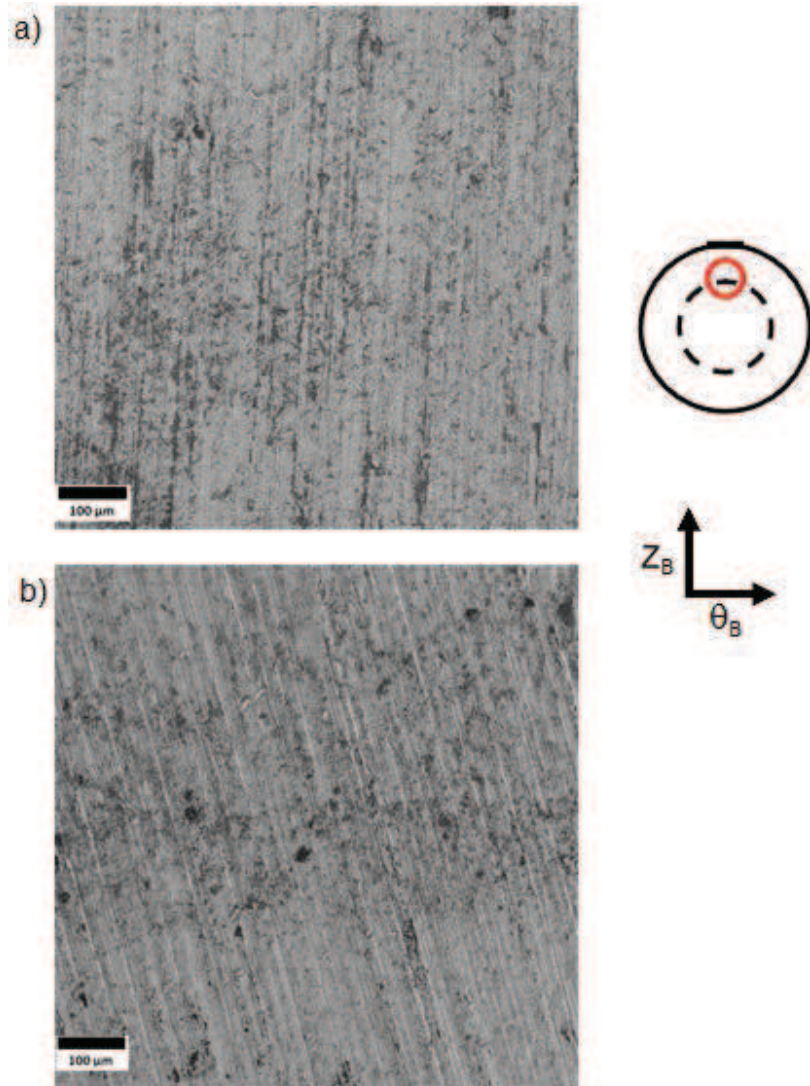
Figure III.3.14. Comparaison du « kernel moyen de désorientation » correspondant aux cartographies des Figure III.3.3 et Figure III.3.11.

### III.3.c. Comparaison de l'évolution de l'endommagement sous He et H<sub>2</sub>

#### *i. Observations MEB de la surface des disques*

Les observations MEB sont menées sur la surface inférieure des disques (soumise au gaz). Les disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm après essais interrompus sous He et H<sub>2</sub>, présentent une évolution similaire de l'endommagement. Ainsi à la pression d'arrêt  $P_1 = 13$  MPa il n'y a pas d'endommagement en surface (Figure III.3.15). Puis des microfissures apparaissent à la pression d'arrêt  $P_2 = 20$  MPa sous H<sub>2</sub> (Figure III.3.16) et sous He (Figure III.3.17). Enfin, un large réseau de microfissures est observé à la pression d'arrêt  $P_3 = 27$  MPa sous H<sub>2</sub> (Figure III.3.18) et sous He (Figure III.3.19). En revanche, le réseau de fissures visible en surface aux pressions d'arrêt  $P_2$  et  $P_3$  apparaît plus dense pour les essais sous H<sub>2</sub> que sous He.





**Figure III.3.15.** Vue de la surface des disques à la pression d'arrêt  $P_1 = 13$  MPa : a) disque testé sous H<sub>2</sub> et b) sous He.



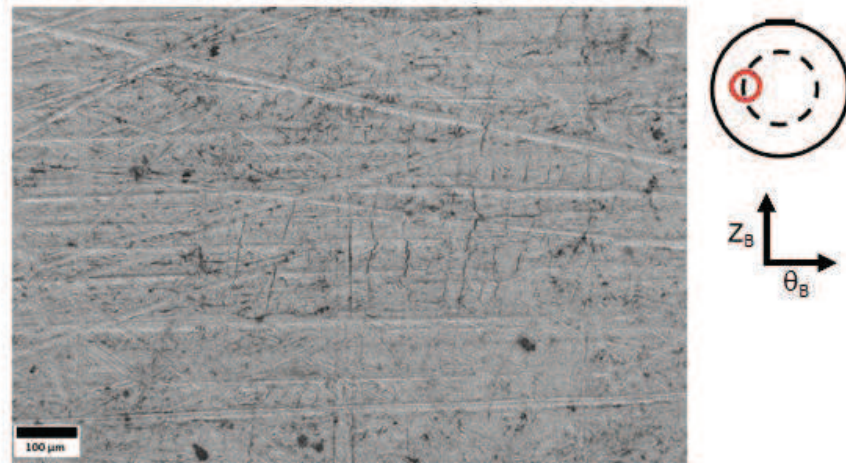


Figure III.3.16. Vue de la surface des disques à la pression d'arrêt  $P_2 = 20$  MPa sous  $H_2$ .

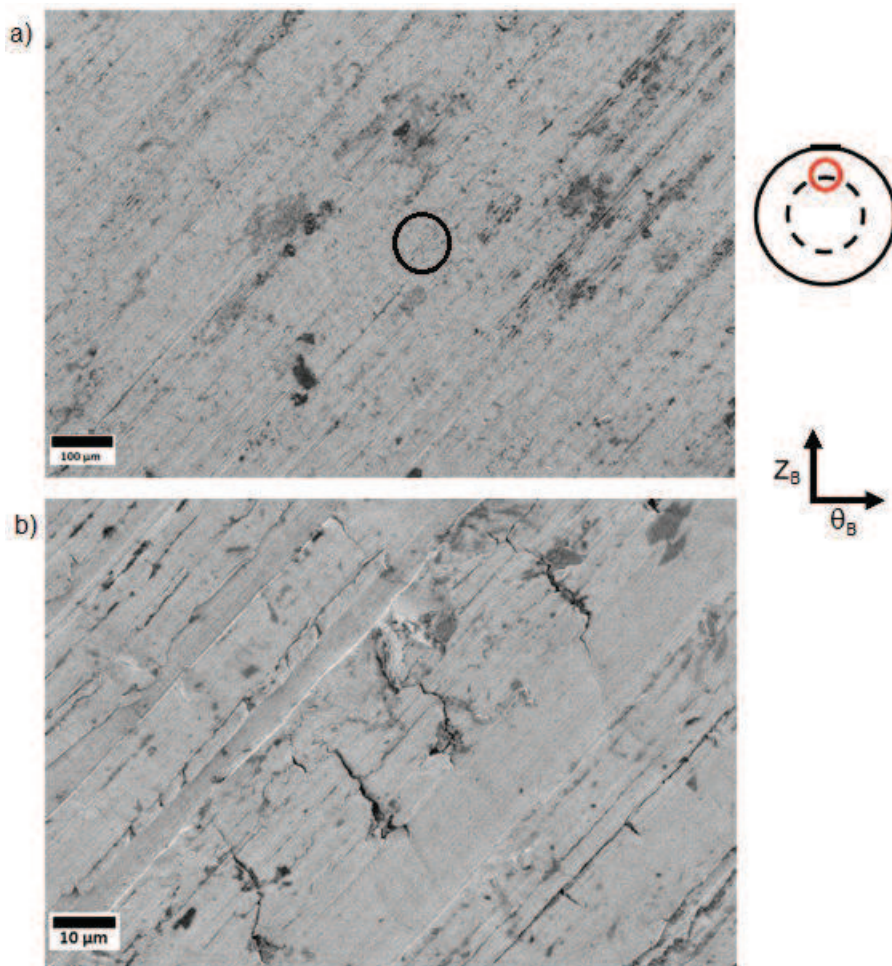


Figure III.3.17. Surface du disque à la pression d'arrêt  $P_2 = 20$  MPa sous He : a) vue globale et b) agrandissement de la zone encerclée en noir.

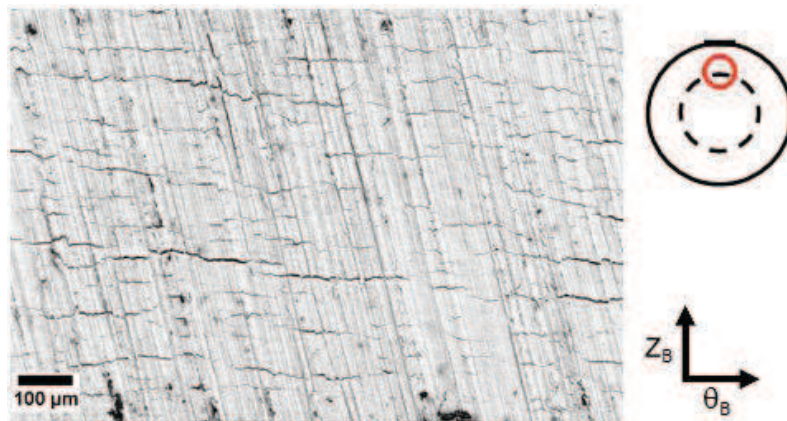


Figure III.3.18. Vue de la surface des disques à la pression d'arrêt  $P_2 = 27$  MPa sous  $H_2$ .

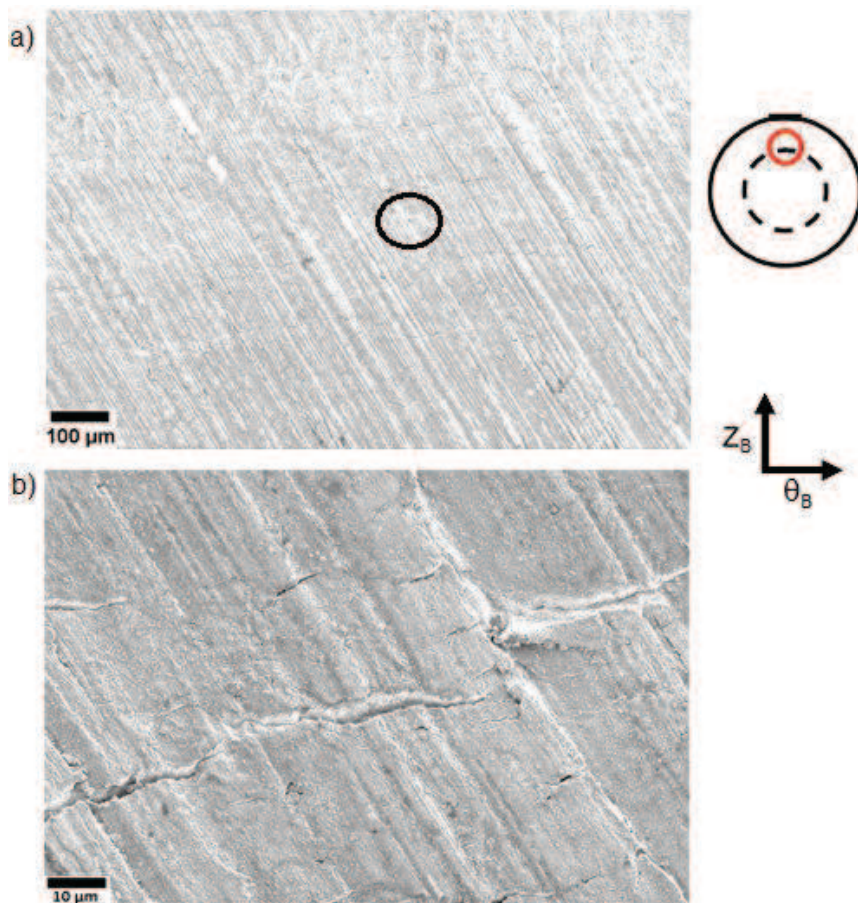
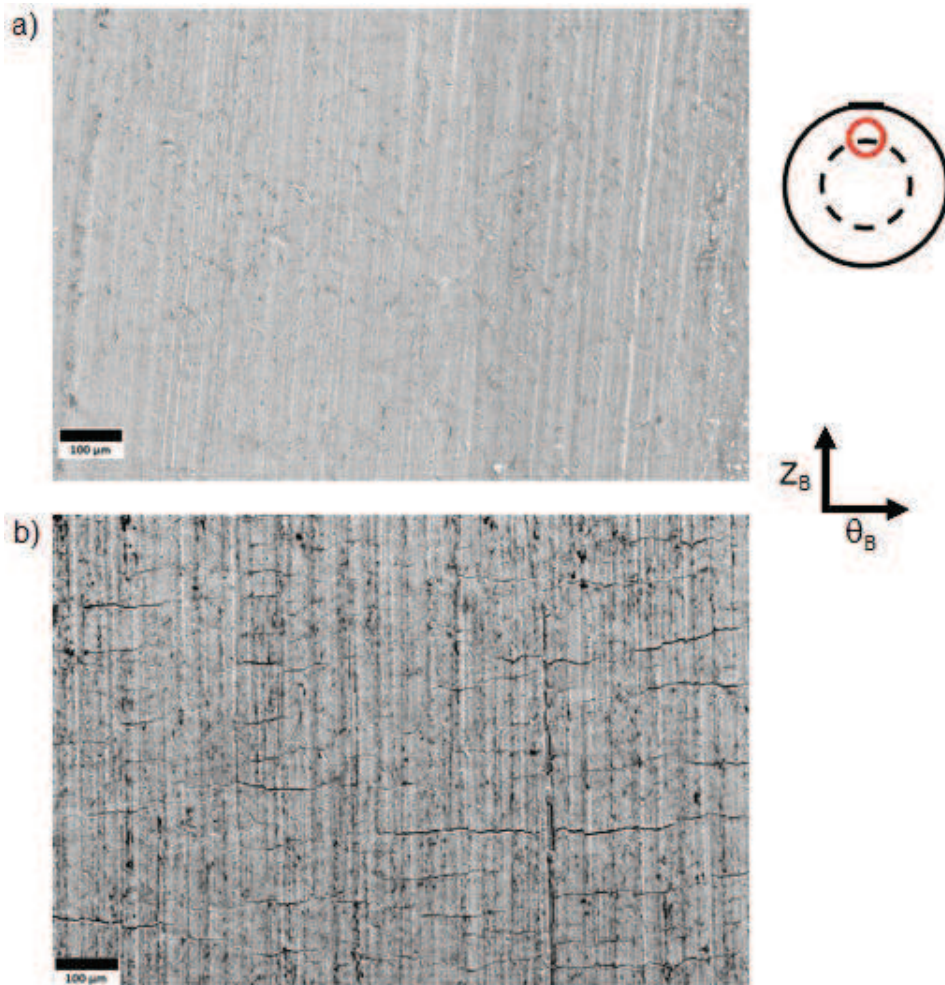


Figure III.3.19. Surface du disque à la pression d'arrêt  $P_3 = 27$  MPa sous He : a) vue globale et b) agrandissement de la zone cerclée en noir.

Des observations menées sur les disques d'épaisseurs  $e_3 = 1,50$  mm après essais interrompus sous  $H_2$  montrent une tendance similaire dans l'évolution de l'endommagement avec une fissuration



apparaissant sur la surface du disque quand la pression d'arrêt augmente. La Figure III.3.20 montre ainsi l'absence de fissure en surface du disque à  $P'_1 = 35$  MPa alors qu'un large réseau de microfissure est visible à  $P'_3 = 47$  MPa.



**Figure III.3.20.** Vue de la surface des disques sous  $H_2$  aux pressions d'arrêt : a)  $P'_1 = 35$  MPa et b)  $P'_3 = 47$  MPa.

## ***ii. Analyses EBSD des disques après essais interrompus***

L'étude de la déformation dans les essais interrompus est réalisée en comparant la distribution du « kernel moyen de désorientation » entre les cartographies EBSD sous He et sous  $H_2$ . Les zones analysées sont situées dans la zone de rupture potentielle au cours d'un essai de disque (Figure III.3.21) et avec un pas de mesure de  $0,6 \mu\text{m}$ .

Ainsi, en traçant les profils de kernels de désorientations pour tous les disques d'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm après essais interrompus (Figure III.3.22), on montre une augmentation des angles de désorientation par rapport à l'état initial. Cette augmentation est cohérente avec l'augmentation de la déformation plastique dans la zone de rupture potentielle, sans qu'il ne soit possible de distinguer des différences significatives entre les essais sous He et sous  $H_2$ .

De même, les distributions de kernels de désorientation obtenus avec l'épaisseur  $e_3$  montrent une augmentation des angles de désorientation sur les états déformés correspondant aux pressions d'arrêt  $P_2$  et  $P_3$  par rapport à l'état initial (Figure III.3.23). Cette observation est cohérente avec l'augmentation de la déformation plastique dans la zone de rupture potentielle comme il a été constaté sur l'épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm.

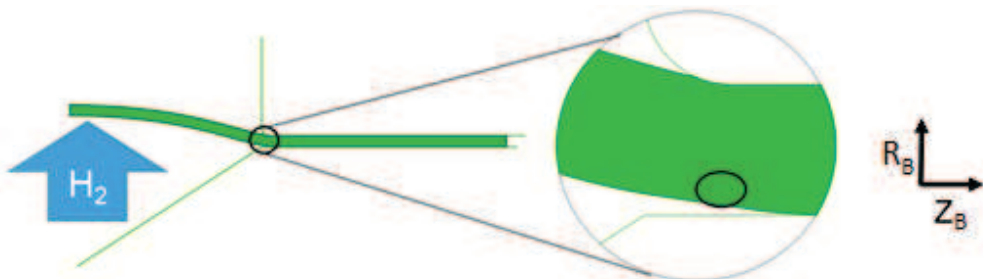


Figure III.3.21. Vue en coupe de l'essai de disque et localisation des zones analysées par EBSD (entourée en noir).

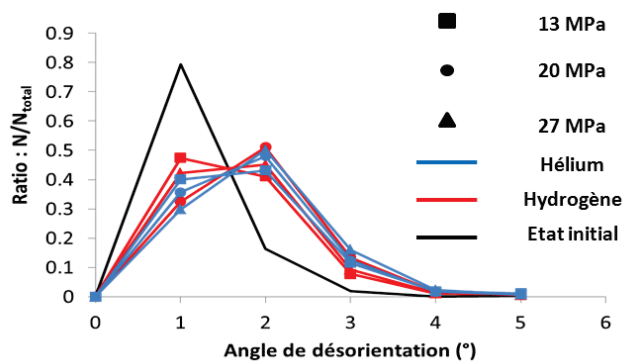


Figure III.3.22. Comparaison des kernels de désorientation pour les disques d'épaisseurs  $e_1 = 0,75$  mm après essais interrompus sous  $H_2$  et sous He.

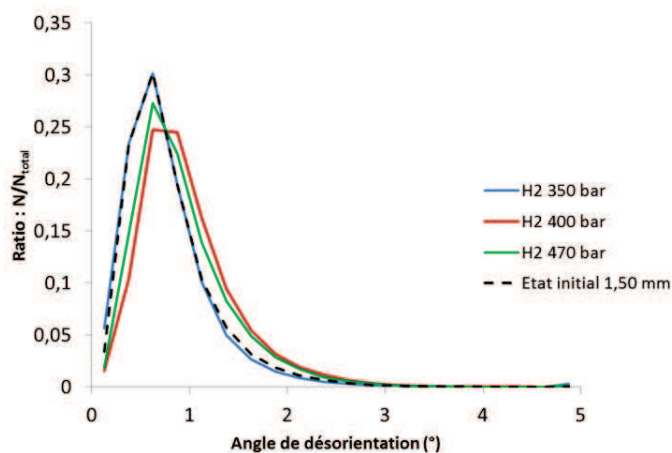
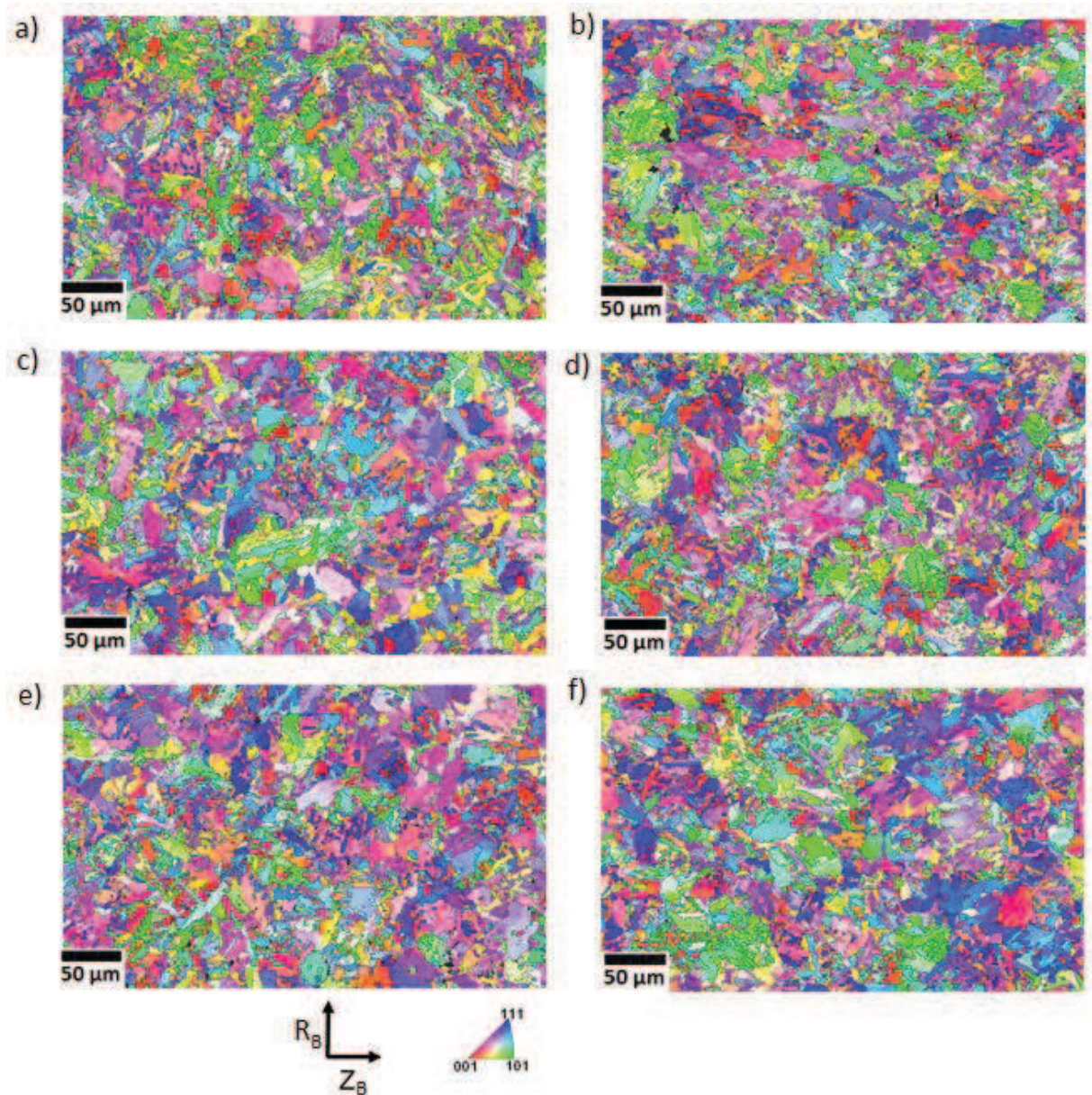


Figure III.3.23. Comparaison des kernels de désorientation pour les disques d'épaisseurs  $e_3 = 1,50$  mm après essais interrompus sous  $H_2$ .



D’ailleurs, les cartographies de figures de pôles inverses obtenues pour les disques d’épaisseur  $e_1$  montrent des microstructures similaires et peu déformées très proches en morphologie pour les deux gaz considérés (Figure III.3.24). Sur les cartographies présentées, les points noirs (non indexés) correspondent à des artefacts de préparation.



**Figure III.3.24.** Cartographies de figure de pôles inverses de la direction  $\theta_0$  dans des disques d’épaisseur  $e_1 = 0,75$  mm testé : a), c) et e) sous  $H_2$  pour les pressions d’arrêt respectives  $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$  ; b), d) et f) sous He pour les pressions d’arrêt respectives  $P_1$ ,  $P_2$  et  $P_3$ .

### **III.4 Conclusions**

L'étude de l'influence des paramètres expérimentaux a abouti à des suggestions d'amélioration du protocole de l'essai de disque. La norme ISO [1] de l'essai de disque préconise d'effectuer les essais sur des disques dont la rugosité  $Ra$  est inférieure à  $1 \mu\text{m}$ . Afin d'assurer que la rugosité des disques est inférieure à celle préconisée par la norme, la procédure utilisée au CTE comprend la réalisation d'un polissage manuel sur les disques. Cependant ce type d'opération ne permet pas de garantir la reproductibilité de l'état de surface obtenu, et est donc une source potentielle de dispersion. Pour cela, il est suggéré de ne plus effectuer de polissage manuel sur les disques avant essai et de spécifier la rugosité voulue dès la phase d'usinage des disques.

De plus, il n'y a actuellement pas de spécification sur la localisation du prélèvement des disques ainsi que sur la répartition des disques, alors que leurs propriétés mécaniques présentent une dispersion inhérente au procédé de fabrication des bouteilles. Il est donc suggéré de définir précisément le lieu de prélèvement des disques, en hauteur de fût, en circonférence et en épaisseur de la virole. L'une des causes de dispersion des résultats de pression de rupture est attribuée aux hétérogénéités d'état métallurgique du matériau consécutives aux traitements thermomécaniques du procédé de fabrication des bouteilles.

Le calcul de l'indice de fragilisation moyen  $I_{moy}$  a montré une grande dispersion dans les résultats pour les fortes épaisseurs et notamment pour l'épaisseur  $e_2 = 1,20 \text{ mm}$ , ne permettant pas de conclure sur l'effet de l'épaisseur. Cependant, sur l'ensemble des essais réalisés, les indices moyens calculés sont globalement inférieurs à 2.

Les courbes flèche-pression enregistrées au cours des essais de disques constituent une base expérimentale pour analyser la réponse globale de l'essai. Les résultats sont cependant assez dispersés, et la part de dispersion due aux variations de propriétés mécaniques a pu être partiellement identifiée. L'allure des courbes flèche-pression avant rupture est similaire pour les essais sous He et sous  $\text{H}_2$ , bien que les flèches soient en moyenne légèrement supérieures dans le cas des essais sous  $\text{H}_2$ .

La réalisation d'essais interrompus a permis d'obtenir des disques déformés mais non rompus. Des mesures géométriques de profils des disques après essais ont été obtenues par surfométrie optique (en collaboration avec le LISSMA), permettant d'enrichir la base de données expérimentale en vue de confrontations avec les simulations par éléments finis. Pour l'épaisseur  $e_1 = 0,75 \text{ mm}$ , la géométrie du disque est quasiment identique pour les disques déformés sous hélium ou sous hydrogène, tandis que les résultats sont plus dispersés pour l'épaisseur  $e_3 = 1,50 \text{ mm}$ . Les profils obtenus étant cependant cohérents avec les mesures de flèche pendant les essais avant le retrait des outils de maintien, l'influence du serrage dans les essais de disques sur forte épaisseur peut être questionnée.

La comparaison de la microfissuration superficielle pour différents états de surface a mis en évidence que pour l'état de surface brut de rectification les microfissures sont réparties dans la zone de rupture potentielle de façon relativement homogène selon la circonférence du disque. Alors que les états polis présentent des fissurations principalement selon les rayures de polissage les plus importantes, l'état brut montre une fissuration s'appuyant localement sur les stries de rectification et ce quelle que soit l'orientation des stries par rapport au parcours moyen de



rectification. Ces microfissures superficielles n'ont cependant pas pu être corrélées à des initiations de fissuration macroscopique dans les coupes radiales des essais interrompus.

Suite aux essais de disque à rupture, des observations post-mortem ont montré que le faciès de rupture est complètement de type ductile sous He. Sous H<sub>2</sub> l'amorçage est de type fragile et l'arrachage final présente un faciès de rupture de type ductile, moins prononcé que sous He.

Les analyses EBSD dans des coupes radiales de disques déformés sous He et sous H<sub>2</sub> montrent des caractéristiques similaires pour les essais interrompus, suggérant un comportement mécanique similaire avant initiation de la rupture, ce qui est cohérent avec l'allure des courbes flèche-pression. A plus forte pression d'hélium, la microstructure dans la zone de rupture est nettement déformée plastiquement et endommagée, tandis que la microstructure post-mortem d'essais sous H<sub>2</sub> diffère très peu de la microstructure initiale, indiquant une rupture locale brutale sans déformation plastique importante.

### ***Bibliographie***

[1] ISO 11114-4, 2005. *Transportable gas cylinders – compatibility of cylinder and valve materials with gas contents – Part 4: Test methods for selecting metallic materials resistant to hydrogen embrittlement.*

[2] <http://www.stilsa.com/indexFR.htm>

[3] M. Calcagnotto, Y. Adachi, D. Ponge, D. Raabe. *Deformation and fracture mechanisms in fine- and ultrafine-grained ferrite/martensite dual-phase steels and the effect of aging.* Acta Materiala, 2011. **59**: p.658-670.



## IV. Modélisation par éléments finis de l'essai de disque

Ce chapitre aborde la modélisation par la méthode des éléments finis de l'essai de disque. Les simulations sont réalisées avec le code de calcul Abaqus [1] et sont basées sur les travaux de Charles *et al.* [2].

Dans un premier temps, le modèle 2D axisymétrique et les hypothèses de calcul sont présentés. Les paramètres matériau identifiés pour la simulation numérique sont donnés et les résultats numériques d'essai de disque sont confrontés aux mesures expérimentales pour validation.

Une attention particulière est portée dans l'analyse des résultats de simulation à l'influence de différents paramètres (épaisseur des disques, rayon de courbure de la bride supérieure, écrouissage du matériau) sur la distribution des champs mécaniques dans le disque.

Enfin une simulation 3D de l'essai de disque est réalisée, avec prise en compte de l'endommagement de type ductile est utilisée pour évaluer la pression potentielle de rupture sous  $H_e$  de disques de très fortes épaisseurs (typiquement 2,00 et 2,50 mm).

Tous les calculs sont réalisés dans le code de calcul Abaqus v6.11 et sont effectués sur un cluster de calcul du LSPM qui comprend 8 nœuds :

- 1 nœud maître, de 2 processeurs à 4 cœurs, à 2,13 GHz et 24 Go de RAM ;
- 2 nœuds, de 2 processeurs à 6 cœurs de 2,66 GHz et 96 Go de RAM ;
- 3 nœuds, de 2 processeurs à 6 cœurs de 2,60 GHz et 128 Go de RAM ;
- 1 nœud, de 2 processeurs à 6 cœurs, à 2,60 GHz et 32 Go de RAM ;
- 1 nœud, de 2 processeurs à 4 cœurs, à 2,93 GHz et 48 Go de RAM.

## IV.1. Présentation du modèle

### IV.1.a. Hypothèses de calcul

En considérant en première approximation le matériau comme isotrope (cohérent avec la faible texture cristallographique mesurée, voir paragraphe II.3.c.), compte-tenu de la symétrie de révolution de l'essai, le problème est traité en 2D dans le plan  $(r_d, z_d)$ , l'axe  $z_d$  étant axe d'axisymétrie.

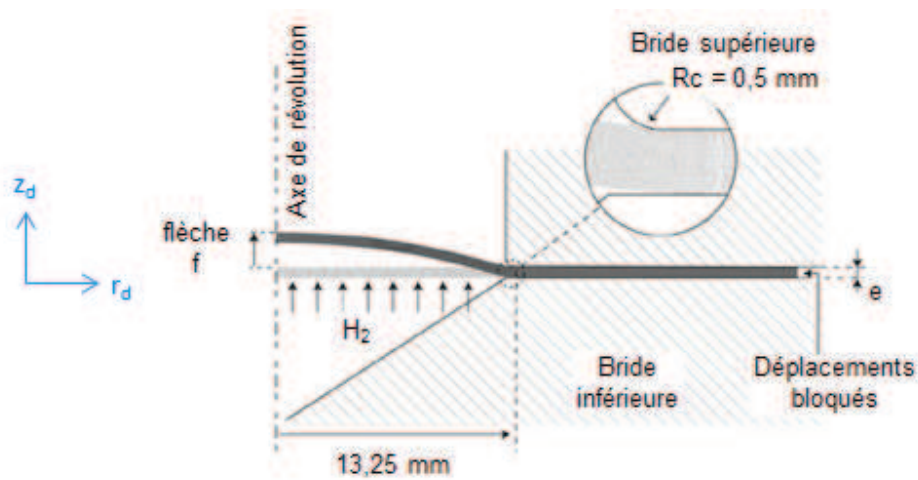


Figure IV.1.1. Modélisation de « l'essai de disque » : configuration et conditions aux limites (d'après [2]).

La simulation d'un rectangle dont les côtés sont respectivement le rayon (29 mm) et l'épaisseur  $e$  du disque est alors suffisante pour modéliser le disque dans ce plan (Figure IV.1.1). Différentes valeurs de l'épaisseur  $e$  sont utilisées (Tableau IV.1.1), correspondant à des valeurs réelles des essais réalisés (0,75 et 1,50 mm) ainsi qu'à des valeurs virtuelles plus élevées (2,00 et 2,50 mm). Le maillage est constitué d'éléments CAX4T, éléments bi-linéaires à 4 nœuds et 4 points d'intégration et est représenté à la Figure IV.1.2 dans le cas de l'épaisseur 0,75 mm. Le Tableau IV.1.1 donne le nombre et la taille des éléments pour chaque épaisseur de disque considérée. L'indépendance des champs mécaniques vis-à-vis du maillage a été vérifiée pour les épaisseurs 0,75 mm et 1,50 mm.

Tableau IV.1.1. Epaisseurs considérées et nombre et taille des éléments correspondants.

Epaisseur de disque (mm)	Nombre d'éléments	Taille des éléments ( $\mu\text{m}$ )	
		Axe z	Axe r
0,75	55062	20	20
1,50	105777	20	20
2,00	77200	20	37
2,50	96500	20	37

Le comportement du matériau est supposé élastoplastique isotrope, avec une loi d'écrouissage isotrope identifiée par essais de traction sous air à température ambiante. Les outils sont considérés rigides. Le contact disque-outils se fait sans frottement avec une condition de non interpénétration. Le bord extérieur du disque est maintenu fixe (déplacements bloqués des nœuds situés à  $r_d = 29$  mm). Le chargement se fait à pression imposée avec une vitesse de pressurisation constante  $v_p = 0,1$  MPa/min (soit  $1,6 \cdot 10^{-3}$  MPa/s), jusqu'à une valeur maximale fixée a priori. La pression maximale est choisie telle que supérieure à la pression de rupture expérimentale maximale obtenue sous He, c'est-à-dire de 60 MPa pour l'épaisseur 0,75 mm et de 120 MPa pour l'épaisseur 1,50 mm. Pour les épaisseurs 2,00 mm et 2,50 mm, en raison de l'absence de résultats expérimentaux, la pression maximale est définie par extrapolation de la pression maximale définie pour l'épaisseur 1,50 mm : 160 MPa pour l'épaisseur 2,00 mm et 220 MPa pour l'épaisseur 2,50 mm.

Dans le cas des essais interrompus, la simulation du retour élastique des disques a été effectuée en ajoutant deux étapes supplémentaires :

- une fois la pression d'arrêt atteinte, dépressurisation à une vitesse de 4,68 MPa/min ( $7,8 \cdot 10^{-2}$  MPa/s) jusqu'à 0 MPa de la cellule d'essai ;
- retrait de la bride supérieure.

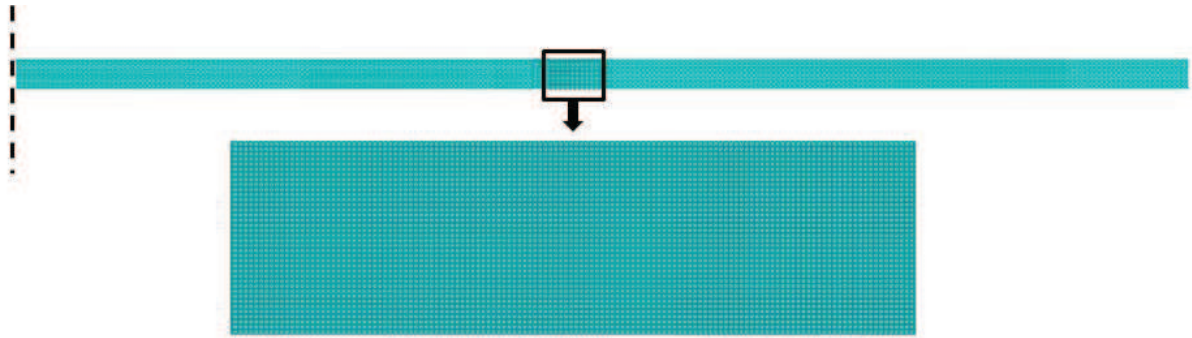


Figure IV.1.2. Maillage du disque : exemple pour l'épaisseur  $e = 0,75$  mm.

#### IV.1.b. Paramètres matériaux utilisés

Le comportement mécanique est décrit selon le schéma classique de l'élastoplasticité isotrope. Le critère de plasticité est défini par une surface de charge :

$$g(\sigma_{eq}, \sigma_Y(\varepsilon_{eq})) = \sigma_{eq} - \sigma_Y(\varepsilon_{eq}) = 0, \quad (IV.1.1)$$

où :  $\sigma_{eq} = \sqrt{3\sigma_D : \sigma_D/2}$  est la contrainte équivalente de von Mises,  $\sigma_Y$  la contrainte d'écoulement plastique en traction et  $\varepsilon_{eq} = \int \sqrt{2\varepsilon_{eq} : \varepsilon_{eq}/3} dt$  la déformation plastique équivalente cumulée.  $\sigma_D$  est le déviateur du tenseur des contraintes tel que  $\sigma + P_H I = \sigma_D$  avec  $I$  le tenseur identité et  $P_H$  la pression hydrostatique.

L'élasticité est décrite par le module d'Young  $E$  (GPa) et le coefficient de Poisson  $\nu$ , dont les valeurs ont été prises dans la littérature [4, 5]. Le comportement plastique est basé sur une loi d'érouissage isotrope saturante (loi de Voce) cohérente avec le comportement observé au cours des essais de traction. En chargement monotone, la relation entre la contrainte équivalente et la déformation plastique équivalente  $\varepsilon_{eq}$  s'écrit :

$$\sigma_{eq} = A + R_{sat}(1 - e^{-C\varepsilon_{eq}}), \quad (IV.1.2)$$

où  $A$  est la limite élastique initiale (MPa),  $R_{sat}$  (MPa) et  $C$  (sans dimension) des paramètres matériau.

Les essais de traction ayant montré une variabilité du comportement du matériau, attribuée essentiellement aux variations de traitements thermomécaniques lors de la fabrication de la bouteille (voir paragraphe II.2.b.), l'identification des paramètres d'érouissage a été effectuée indépendamment sur les deux courbes de traction expérimentales correspondant aux niveaux maximal (V2T6) et minimal (V2T5) de contraintes parmi les échantillons de la virole  $V_2$  (Figure IV.1.3), conduisant à deux jeux de paramètres d'érouissage. Les paramètres matériaux utilisés sont donnés dans le Tableau IV.1.2.

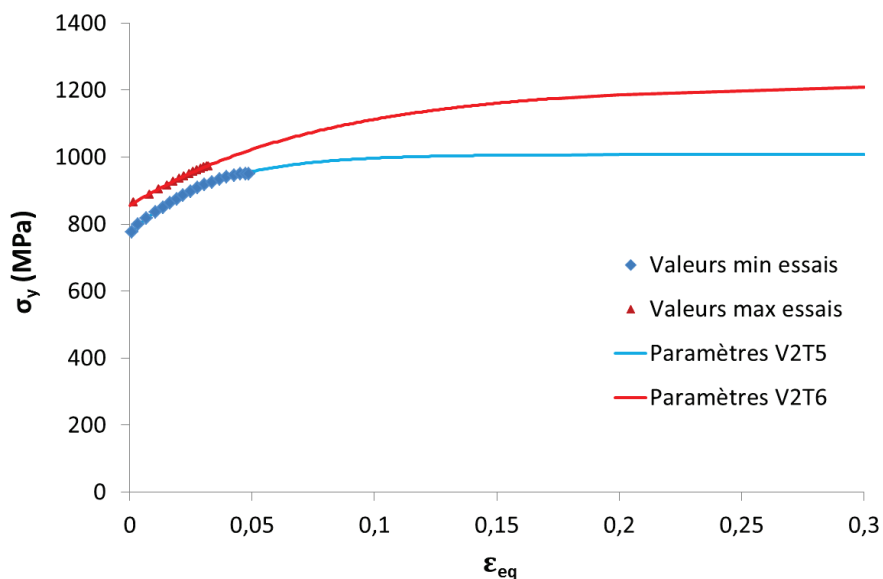


Figure IV.1.3. Comparaison des lois d'érouissage identifiées aux courbes de traction expérimentales.

Tableau IV.1.2. Paramètres utilisés pour l'élastoplasticité isotrope.

Jeu de paramètres	Constantes élastiques		Paramètres d'érouissage		
	$E$ (MPa)	$\nu$	$A$ (MPa)	$R_{sat}$ (MPa)	$C$
V2T5	206 000 [4]	0,3 [5]	771	237	30,8
V2T6			855	361	12,5



### IV.1.c. Comparaison simulations-mesures expérimentales

Deux types de comparaisons entre calculs et mesures expérimentales sur les épaisseurs 0,75 et 1,50 mm ont pu être effectués : d'une part sur les courbes flèche-pression enregistrées lors des essais de disque sous  $H_2$  (paragraphe III.2.a.), d'autre part sur les déformées des disques grâce aux mesures de surfométrie effectuées sur les disques après essais interrompus (paragraphe III.2.c.). Dans ce dernier cas, les résultats de simulation sont ceux obtenus à l'issue de la simulation du retour élastique.

#### i. Epaisseur 0,75 mm

La Figure IV.1.4 présente une comparaison entre les courbes flèche-pression expérimentale et numérique pour l'épaisseur 0,75 mm. L'allure globale des courbes calculées et mesurées est similaire et les courbes flèche-pression simulées se situent entre les courbes minimale et maximale mesurées expérimentalement.

On remarque par ailleurs que la courbe flèche-pression simulée avec le jeu de paramètres V2T5 tend à se rapprocher des valeurs de flèche maximales mesurées au cours des essais alors que la courbe flèche-pression avec le jeu de paramètres V2T6 est plus proche des valeurs de flèche minimales. Ceci est cohérent avec le positionnement des disques concernés, les valeurs de flèche maximales ayant été obtenues sur le disque V2D5.2, disque situé dans un secteur angulaire proche de l'éprouvette de traction V2T5 alors que les valeurs de flèche minimale sont obtenues avec le disque V2D7.3, disque situé dans un secteur angulaire proche de celui de l'éprouvette de traction V2T6. Ces résultats montrent que la simulation fournit une bonne description des courbes flèche-pression de l'essai réel.

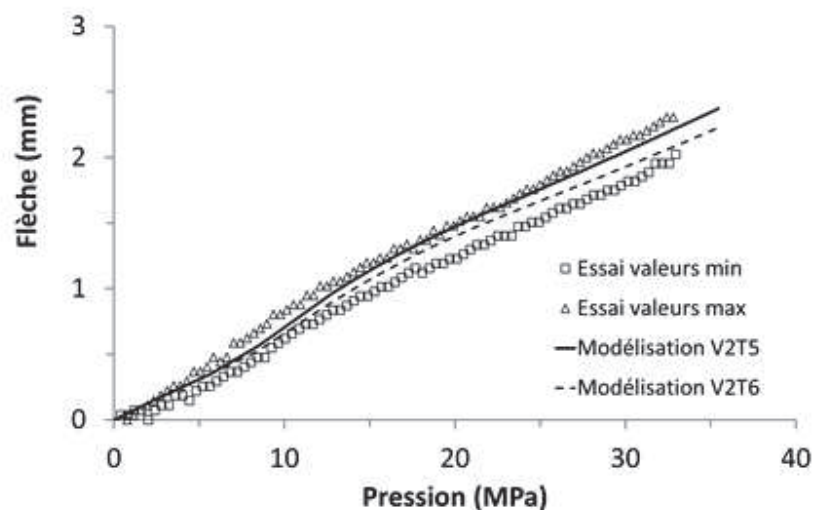
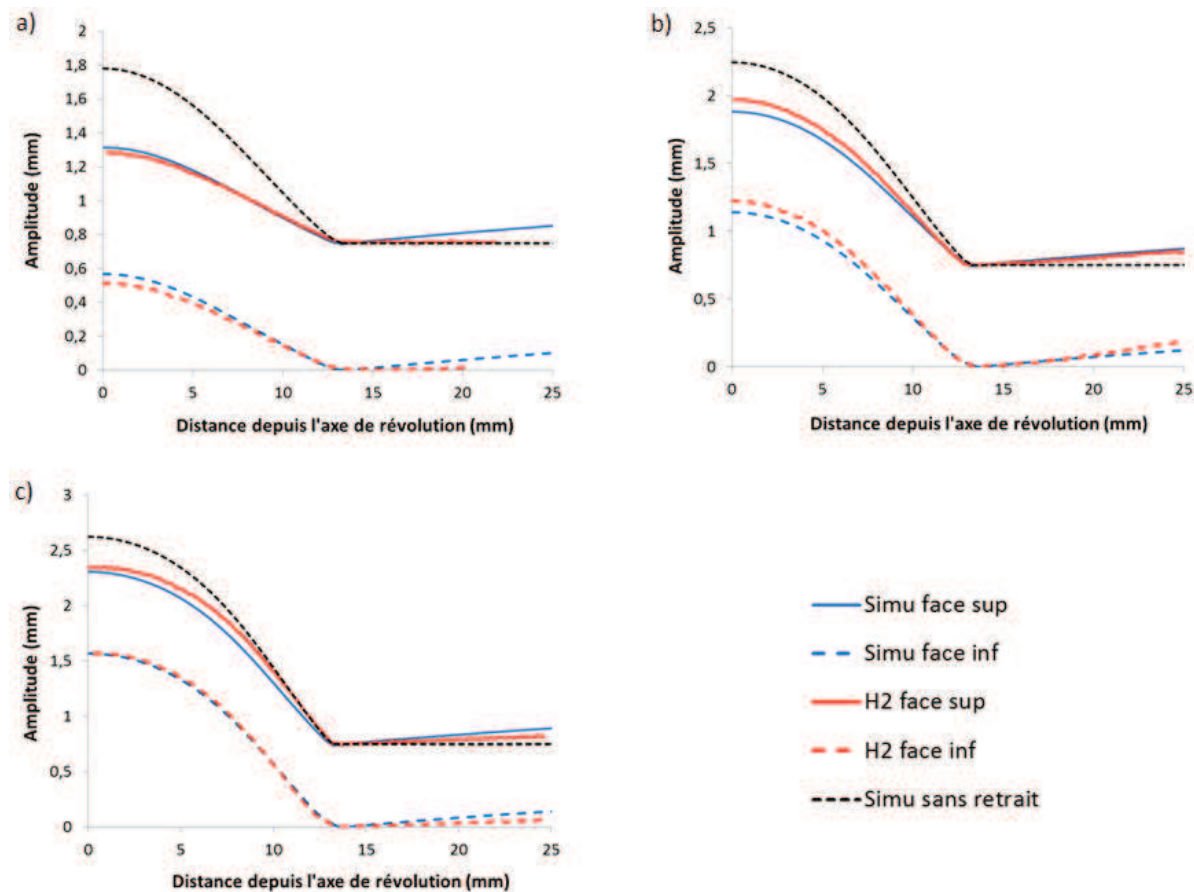


Figure IV.1.4. Comparaison des courbes flèche-pression expérimentale et numérique pour l'épaisseur 0,75 mm.

La Figure IV.1.5 présente la comparaison des profils mesurés par surfométrie et ceux calculés par simulation numérique en utilisant le jeu de paramètres V2T5. Les résultats montrent que les profils calculés sont globalement en accord avec les profils mesurés. Sur la face supérieure les profils calculés présentent une forme similaire aux profils mesurés et notamment au pôle du disque où la déformée calculée est en très bon accord avec la déformée mesurée.

La représentation du profil sur la face supérieure du disque avant le retrait de l'outil (en pointillés noir) illustre l'importance de la prise en compte de la dépressurisation et du retrait des outils dans la simulation. Le profil sans retrait présentant une valeur de flèche nettement supérieure à la flèche du disque après retrait et ce notamment à la pression  $P_1 = 13$  MPa.

Sur la face inférieure, les profils calculés sont également en très bon accord avec les profils mesurés et ce notamment au niveau du rayon de courbure (situé à une distance  $r_d = 13$  mm de l'axe de révolution du disque) où les profils expérimentaux et numériques sont superposables et ce particulièrement pour la pression d'arrêt  $P_3 = 27$  MPa.



**Figure IV.1.5.** Comparaisons expérimentales et numériques (paramètres V2T5) des mesures de profil pour l'épaisseur de disque 0,75 mm aux pressions : a)  $P_1 = 13$  MPa;  $P_2 = 20$  MPa et  $P_3 = 27$  MPa.

## ii. Epaisseur 1,50 mm

La Figure IV.1.6 présente la comparaison entre courbes flèche-pression expérimentale et numérique dans le cas de l'épaisseur 1,50 mm. Globalement les courbes expérimentales et numériques ont des formes similaires, soulignant une description cohérente de l'évolution de la flèche au cours de l'essai. Cependant, on remarque que le modèle numérique prévoit une plus grande « rigidité » de la réponse globale que dans l'essai expérimental, conduisant à une sous-estimation de la flèche au cours de l'essai. Cette augmentation de la rigidité peut être due à des conditions aux limites trop sévères (outils rigides, blocage, aucun déplacement,...) par rapport aux conditions réelles de l'essai, qui sont difficilement accessibles.

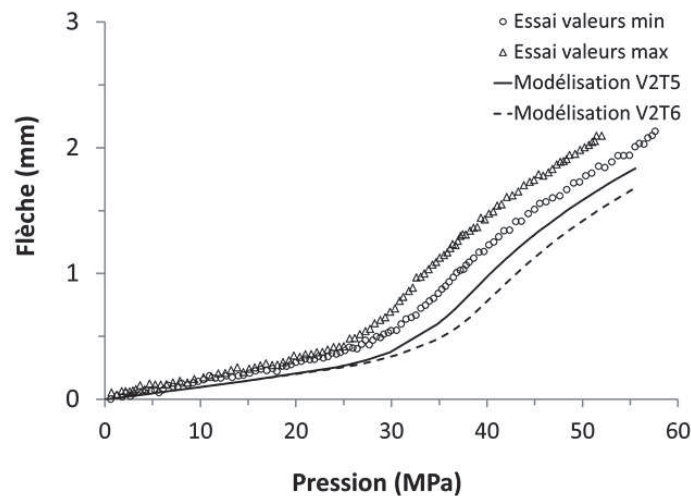


Figure IV.1.6. Comparaison des courbes flèche-pression expérimentale et numérique pour l'épaisseur 1,50 mm.

Afin de simuler une plus faible rigidité globale de la cellule d'essai, un module élastique apparent  $E_{app}$  a été utilisé à la place du module d'Young  $E$  du matériau, (avec  $E_{app} < E$ ). Les simulations sont réalisées avec les paramètres d'écroutissage V2T5, paramètres ayant permis d'obtenir les valeurs de flèche les plus proches de celles mesurées expérimentalement. La valeur de  $E_{app}$  influe nettement sur les courbes, et une baisse sensible du module permet d'améliorer significativement les courbes simulées (Figure IV.1.7), mais est difficile à justifier expérimentalement.

La comparaison des profils expérimentaux obtenus par surfométrie aux simulations numériques (Figure IV.1.8) montre qu'à la pression d'arrêt  $P'_1 = 35$  MPa un bon accord global est obtenu entre les profils calculés et les profils mesurés sur les faces supérieures et inférieures des disques.

En revanche aux pressions d'arrêt plus élevées ( $P'_2 = 40$  MPa et  $P'_3 = 47$  MPa) on remarque que le profil calculé au pôle du disque est nettement inférieur à celui mesuré, ce qui est cohérent avec la sous-estimation de la flèche numérique constatée (Figure IV.1.6). Cependant, la Figure IV.1.8 montre également que les profils calculés et mesurés sont en bon accord au niveau de la zone du rayon de courbure de l'outil de maintien, et ce aussi bien pour la face inférieure que pour la face supérieure, et qui constitue la zone d'intérêt principal pour l'étude.

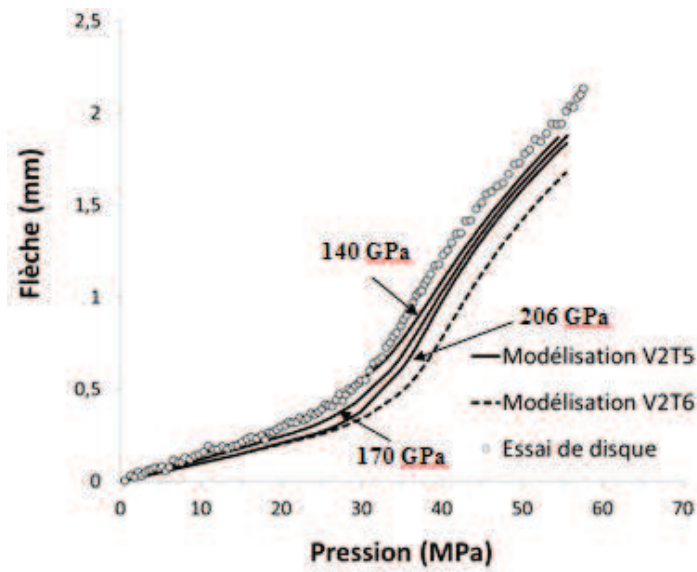


Figure IV.1.7. Influence du module apparent sur les courbes flèche-pression et comparaison avec la courbe flèche pression expérimentale minimale pour l'épaisseur 1,50 mm.

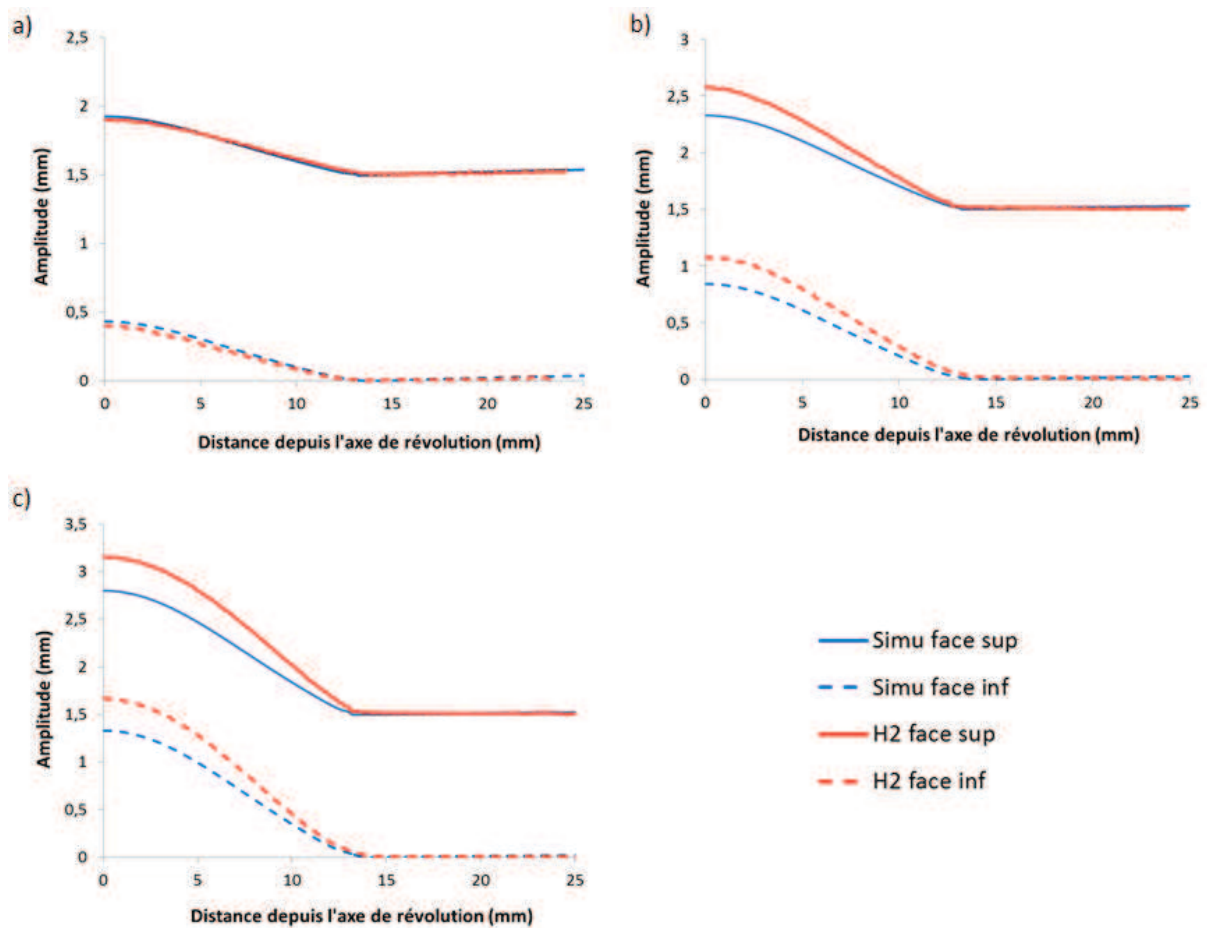
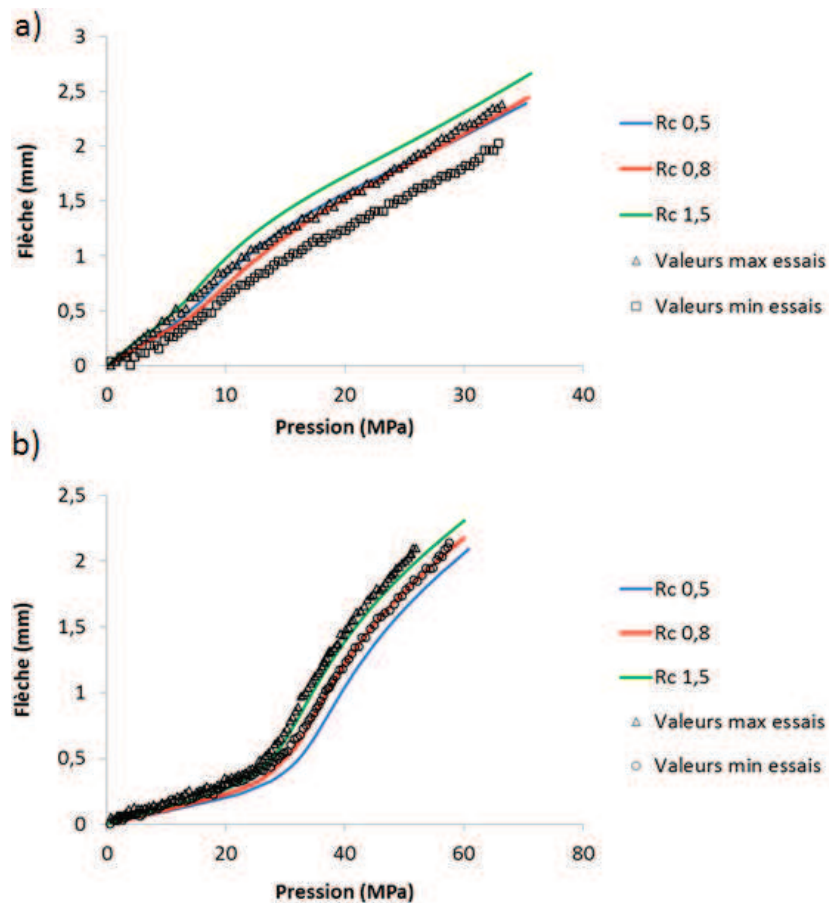


Figure IV.1.8. Comparaisons expérimentales et numériques (paramètres V2T5) des mesures de profil pour l'épaisseur de disque 1,50 mm aux pressions : a)  $P'_1 = 35$  MPa;  $P'_2 = 40$  MPa et  $P'_3 = 47$  MPa.

Le contrôle, a posteriori, de l'ensemble des brides supérieures du CTE a montré que l'usure des outils peut conduire à des variations de la valeur de Rc résultant en un rayon de courbure en conditions réelles supérieur au rayon de courbure  $Rc_1 = 0,5$  mm tel que défini par la norme ISO [3]. La bride d'essai utilisée au cours des travaux de thèse présentait un rayon réel de  $Rc_2 = 0,8$  mm et certaines brides contrôlées présentaient un rayon pouvant aller jusqu'à  $Rc_3 = 1,5$  mm.

La Figure IV.1.9 présente les courbes flèche-pression issues des simulations des épaisseurs 0,75 mm et 1,50 mm pour les rayons de courbure  $Rc_1$ ,  $Rc_2$  et  $Rc_3$  en utilisant les paramètres V2T5 et les compare aux courbes flèche-pression mesurées expérimentalement. On remarque que l'augmentation du rayon de courbure tend à augmenter la valeur de la flèche. Pour l'épaisseur 0,75 mm les flèches calculées avec les rayons de courbure  $Rc_1$  et  $Rc_2$  sont très proches et situées dans la dispersion expérimentale. En revanche la courbe obtenue avec le rayon de courbure  $Rc_3$  est située en dehors de la dispersion expérimentale.



**Figure IV.1.9.** Comparaison des courbes flèche-pression simulées avec les valeurs expérimentales : a) épaisseur 0,75 mm et b) épaisseur 1,50 mm, simulations réalisées avec le jeu de paramètres V2T5.

Dans le cas de l'épaisseur 1,50 mm, l'effet du rayon de courbure est encore plus net. Ainsi alors que la courbe calculée avec le rayon de courbure  $Rc_1$  avait tendance à sous-estimer la valeur de flèche, les courbes calculées avec  $Rc_2$  et  $Rc_3$  sont dans les dispersions expérimentales, y compris

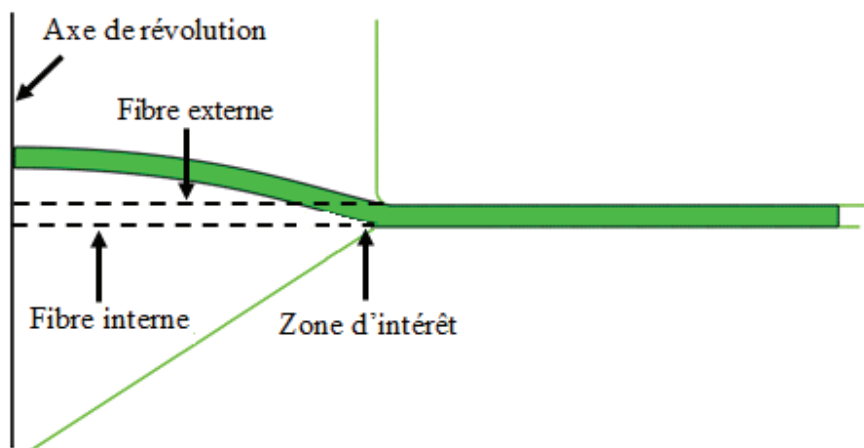
le cas  $Rc_2$  qui correspond au rayon réel pour cet essai. Ceci souligne l'importance du rayon de courbure sur la réponse globale du disque, et ce particulièrement dans le cas de fortes épaisseurs.

La comparaison des résultats expérimentaux et numériques a ainsi montré que la simulation numérique est cohérente avec les mesures expérimentales. La simulation permet de reproduire de façon très satisfaisante les courbes flèche-pression et la géométrie des disques déformés d'épaisseur 0,75 mm. Pour les disques d'épaisseur 1,50 mm, l'accord est moins bon avec les simulations dans les conditions standard de l'essai ( $Rc = 0,5\text{mm}$ ), en revanche en tenant compte du rayon de courbure réel tel que mesuré sur la bride utilisée expérimentalement un bon accord est obtenu.

Dans tous les cas, d'après les mesures de surfométrie, l'accord calcul-expérience est très bon dans la zone d'intérêt pour la rupture, sur la face inférieure des disques au voisinage du rayon de courbure de l'outil de maintien, ce qui permet de considérer avec confiance les champs mécaniques simulés dans cette zone.

#### ***IV.2. Analyse des champs mécaniques simulés***

Dans cette partie, l'analyse numérique de l'essai de disque est réalisée. Dans l'ensemble des résultats de simulations présentés, la face supérieure des disques est définie comme fibre externe, la face inférieure comme fibre interne et la zone de rupture expérimentale zone d'intérêt (Figure IV.2.1).



**Figure IV.2.1.** Superposition de l'état initial (en pointillés), de la déformée (en vert), localisation des fibres interne et externe et de la zone d'intérêt pour l'étude des champs locaux.

Dans un premier temps, les champs mécaniques sont étudiés dans les conditions standard de la norme, c'est-à-dire pour les disques d'épaisseur 0,75 mm avec un rayon de courbure 0,5 mm, jusqu'aux pressions de rupture expérimentales moyennes sous He et sous H<sub>2</sub> (Tableau IV.2.1) et en utilisant les paramètres d'écrouissage V2T5.



**Tableau IV.2.1.** Pressions de rupture expérimentales sous He et sous H<sub>2</sub> issus du Tableau III.2.2. Les valeurs moyennes sont celles utilisées comme valeur maximale dans les simulations

Epaisseur (mm)	P <sub>rupt</sub> (MPa) H <sub>2</sub>	P <sub>rupt</sub> (MPa) He
0,75	29,47	54,51
1,5	53,20	108,2

Puis l'influence de l'épaisseur sur les champs mécaniques est soulignée en effectuant des simulations sur des épaisseurs de 1,50 mm, 2,00 mm et de 2,50 mm. Les champs mécaniques dans l'épaisseur 1,50 mm sont étudiés aux pressions de rupture expérimentales moyennes sous He et sous H<sub>2</sub> (Tableau IV.2.1). La comparaison des épaisseurs testées expérimentalement 0,75 mm et 1,5 mm avec les épaisseurs extrapolées 2,00 mm et 2,50 mm est effectuée pour souligner l'influence de l'épaisseur sur les champs mécaniques.

Ensuite l'influence de Rc sur les champs mécaniques est analysée, compte-tenu des écarts parfois importants constatés sur les cellules d'essai du CTE par rapport aux dimensions de la norme ISO [3] (voir paragraphe IV.1.c.). Enfin, l'influence des paramètres d'érouissage sur les champs mécaniques est étudiée en réalisant des simulations avec les paramètres d'érouissage V2T6.

#### IV.2.a. Champs mécaniques dans l'ensemble du disque

La Figure IV.2.2 et la Figure IV.2.3 présentent les cartographies iso-valeurs des contraintes principales pour les valeurs de pression P<sub>ruptH2</sub> et P<sub>ruptHe</sub>, correspondant aux valeurs expérimentales de rupture (voir Tableau IV.2.1) dans le cas de l'épaisseur 0,75 mm, en utilisant les paramètres d'érouissage V2T5. On remarque l'hétérogénéité du champ de contraintes dans l'ensemble du disque, et notamment dans la zone d'intérêt, où se localisent les plus grandes valeurs de valeurs maximales de  $\sigma_{max}$ . L'état de contrainte au voisinage du pôle du disque est quasiment en expansion biaxiale, avec des gradients en épaisseur qui tendent à diminuer quand la pression augmente. Dans la zone de contact avec la bride supérieure des contraintes de compression apparaissent, tandis que la zone d'intérêt est plus proche d'un état de contraintes biaxiales positives ( $\sigma_{max}$  et  $\sigma_{moy}$  avec  $\sigma_{moy} \sim \sigma_{max} / 2$ ) que d'un état de traction simple.



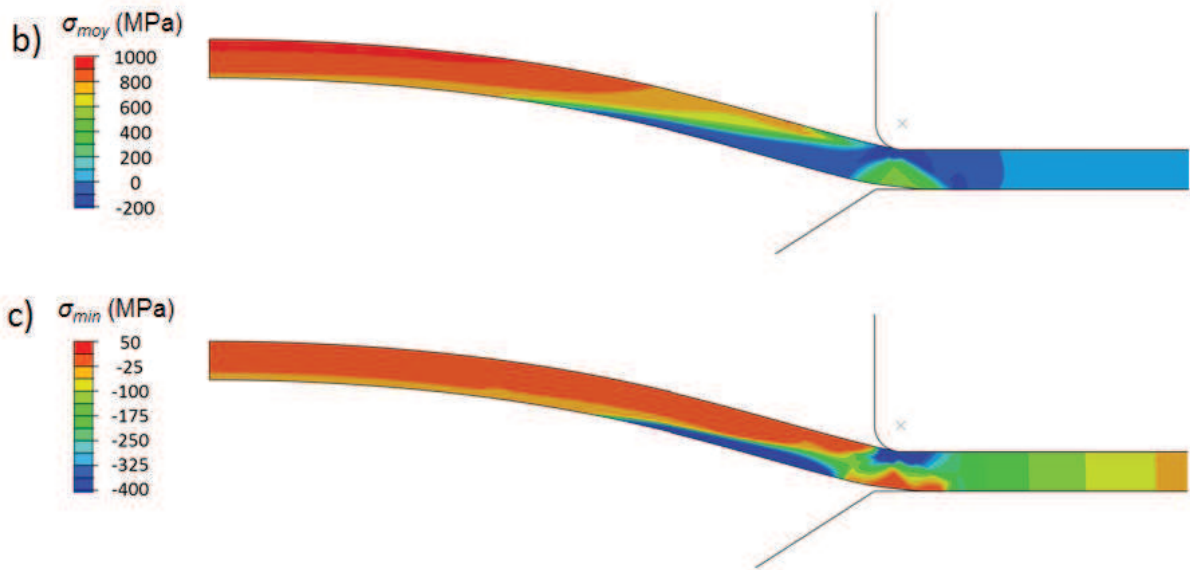
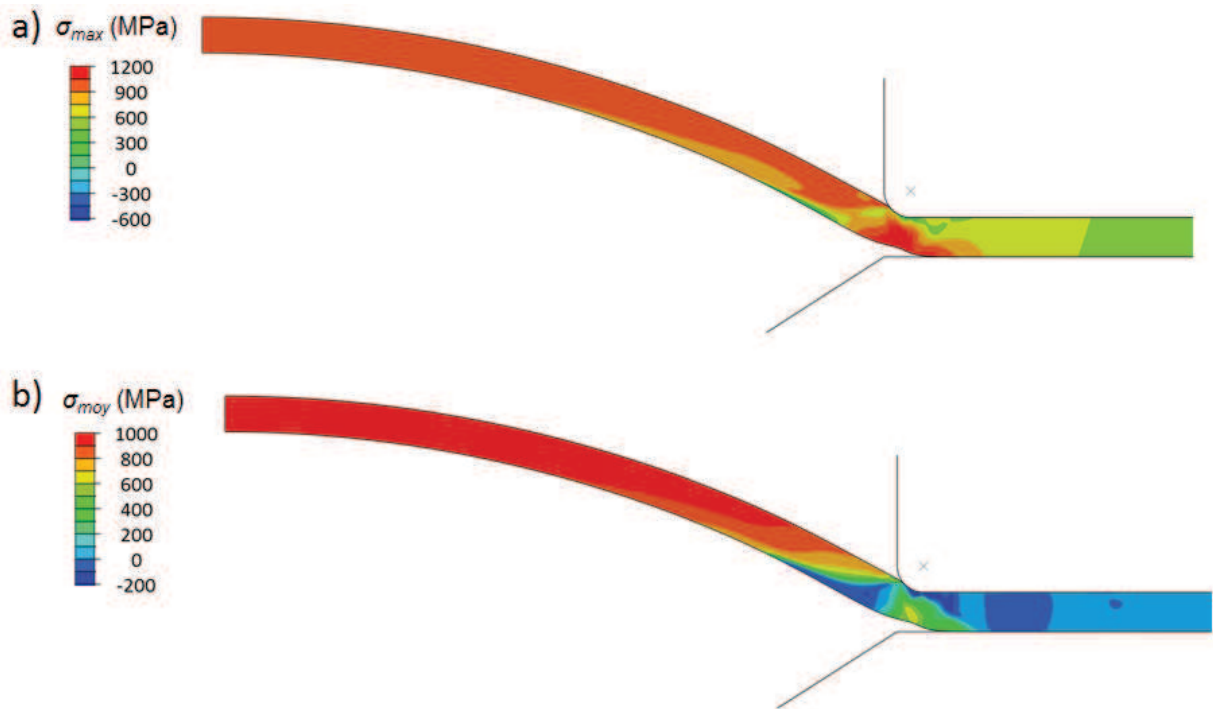


Figure IV.2.2. Cartographies iso-valeurs des contraintes principales dans le disque d'épaisseur 0,75 mm à  $P_{ruptH2} = 29$  MPa : a)  $\sigma_{max}$  ; b)  $\sigma_{mid}$  et c)  $\sigma_{min}$ .



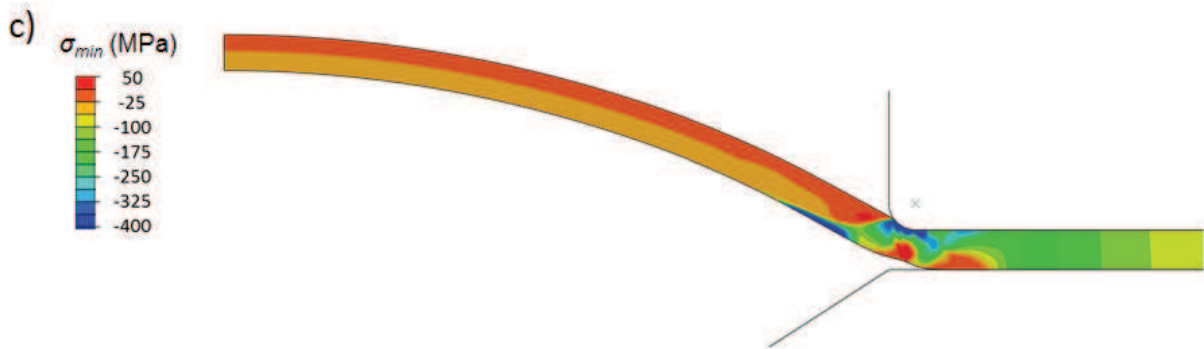


Figure IV.2.3. Cartographies iso-valeurs des contraintes principales dans le disque d'épaisseur 0,75 mm à  $P_{ruptHe} = 54$  MPa : a)  $\sigma_{max}$  ; b)  $\sigma_{mid}$  et c)  $\sigma_{min}$ .

La Figure IV.2.4 représente l'évolution des cartographies iso-valeurs de déformation plastique équivalente ( $\epsilon_{eq}$ ) entre  $P_{ruptH2}$  et  $P_{ruptHe}$ . En dehors de la zone d'intérêt, les déformations restent faibles, les valeurs maximales au pôle passant typiquement de quelques pourcents à 15% environ. Par contre une forte localisation de la déformation est observée dans la zone d'intérêt, avec une augmentation de la déformation dans cette zone entre  $P_{ruptHe}$  et  $P_{ruptH2}$ , les valeurs maximales passant de  $\epsilon_{eq} = 0,15$  à  $\epsilon_{eq} = 0,6$ . La zone d'intérêt est ainsi le lieu à la fois de forts gradients de contrainte et de déformation.

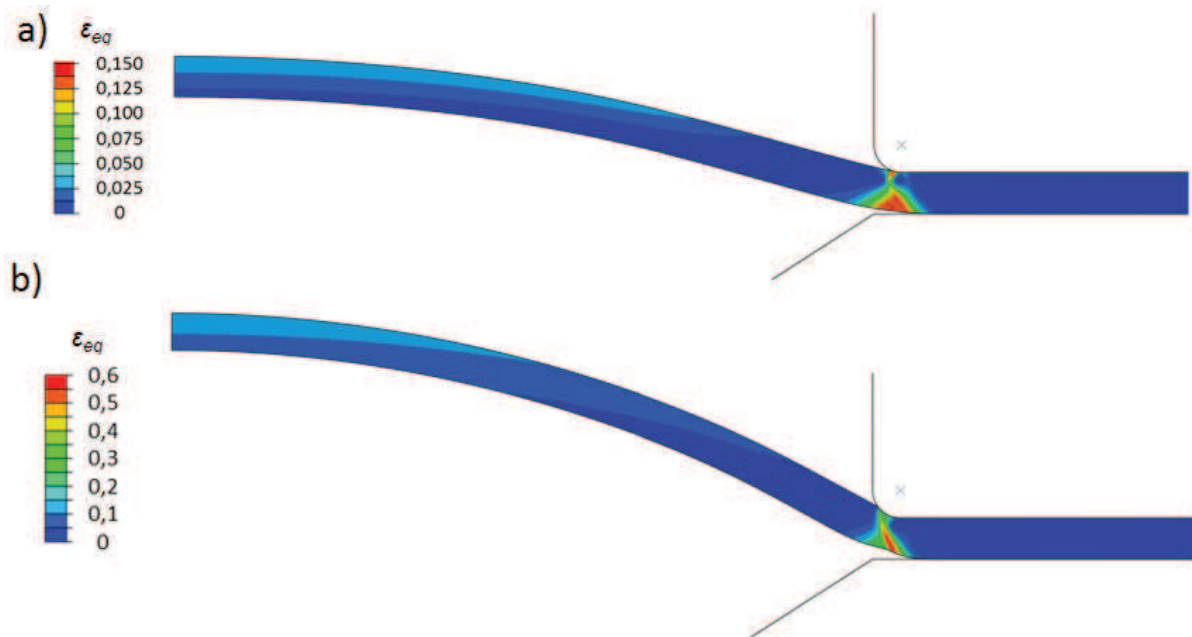


Figure IV.2.4. Cartographies iso-valeurs de  $\epsilon_{eq}$  dans le disque d'épaisseur 0,75 mm : a) à  $P_{ruptH2} = 29$  MPa et b) à  $P_{ruptHe} = 54$  MPa.

## IV.2.b. Influence de l'épaisseur

La Figure IV.2.5 et la Figure IV.2.6 présentent les cartographies iso-valeurs de contrainte maximale principale et de déformation plastique équivalente pour les valeurs de pression de rupture expérimentale respectivement sous H<sub>2</sub> et sous He dans le cas de l'épaisseur 1,50 mm, en utilisant les paramètres d'écrouissage V2T5. Les gradients en épaisseurs sont plus marqués que pour l'épaisseur 0,75 mm, mais avec des tendances similaires dans la zone d'intérêt où sont localisées les contraintes et les déformations maximales, dont les valeurs évoluent nettement entre  $P'_{ruptH_2} = 53$  MPa et  $P'_{ruptHe} = 108$  MPa .

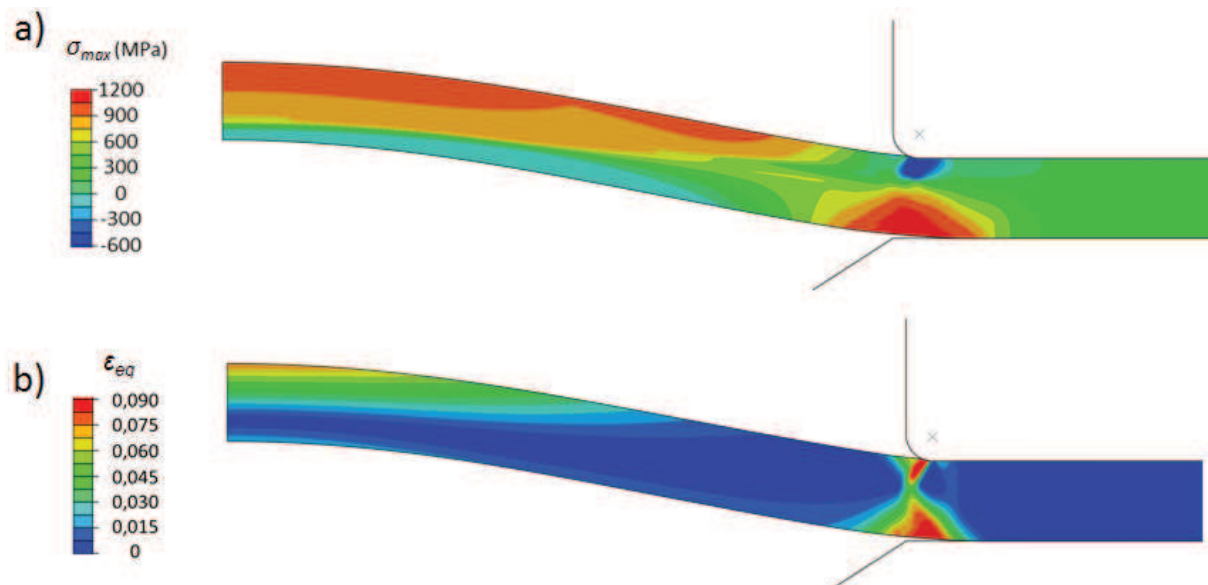


Figure IV.2.5. Cartographies iso-valeurs dans le disque d'épaisseur 1,50 mm à  $P'_{ruptH_2} = 54$  MPa : a)  $\sigma_{max}$  et b)  $\epsilon_{eq}$ .



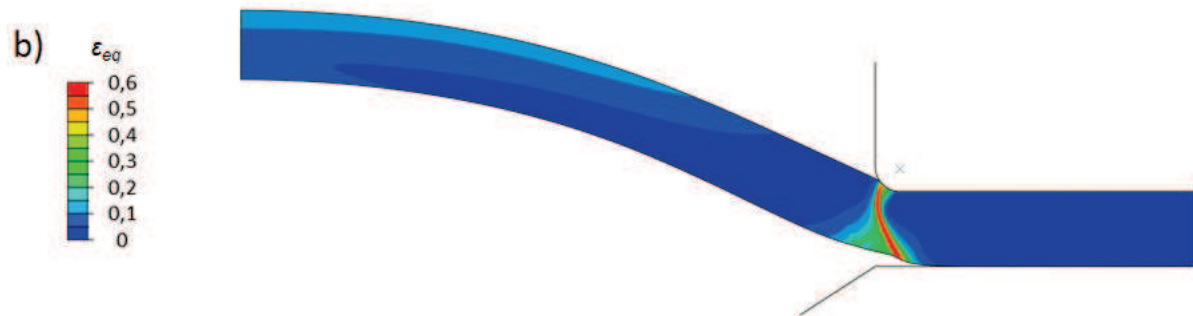


Figure IV.2.6. Cartographies iso-valeurs dans le disque d'épaisseur 1,50 mm à  $P'_{ruptHe} = 108$  MPa : a)  $\sigma_{max}$  et b)  $\epsilon_{eq}$ .

La Figure IV.2.7 présente les courbes flèche-pression calculées pour différentes épaisseurs de disque, avec le jeu de paramètres V2T5 et le rayon de courbure  $Rc_1 = 0,5$  mm. On remarque pour les épaisseurs 1,50 ; 2,00 et 2,50 mm que les courbes présentent un changement de courbure très marqué, correspondant à l'apparition de la déformation plastique, par comparaison à l'épaisseur 0,75 mm.

La Figure IV.2.8 présente les profils de contrainte maximale principale le long de la fibre interne du disque pour différentes épaisseurs à différentes valeurs de flèche choisies arbitrairement : 1 ; 2 et 3 mm.

L'effet d'épaisseur est notable sur l'ensemble de la fibre interne, et affecte particulièrement la zone au voisinage du pôle. Ainsi au niveau de l'axe de révolution du disque, pour les valeurs de flèche 1 et 2 mm la contrainte principale maximale est négative pour les fortes épaisseurs (1,50, 2 et 2,50 mm), mais pour la valeur de flèche de 3 mm, la contrainte principale maximale est positive pour toutes les épaisseurs.

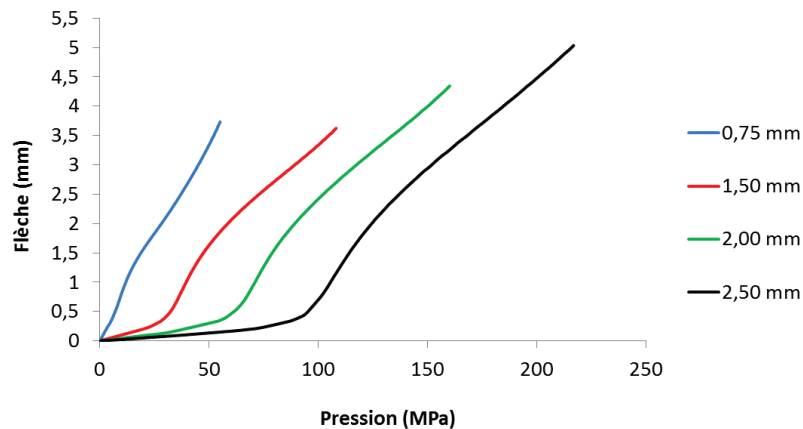


Figure IV.2.7. Courbes flèche-pression calculées pour différentes épaisseurs de disque avec les paramètres V2T5.

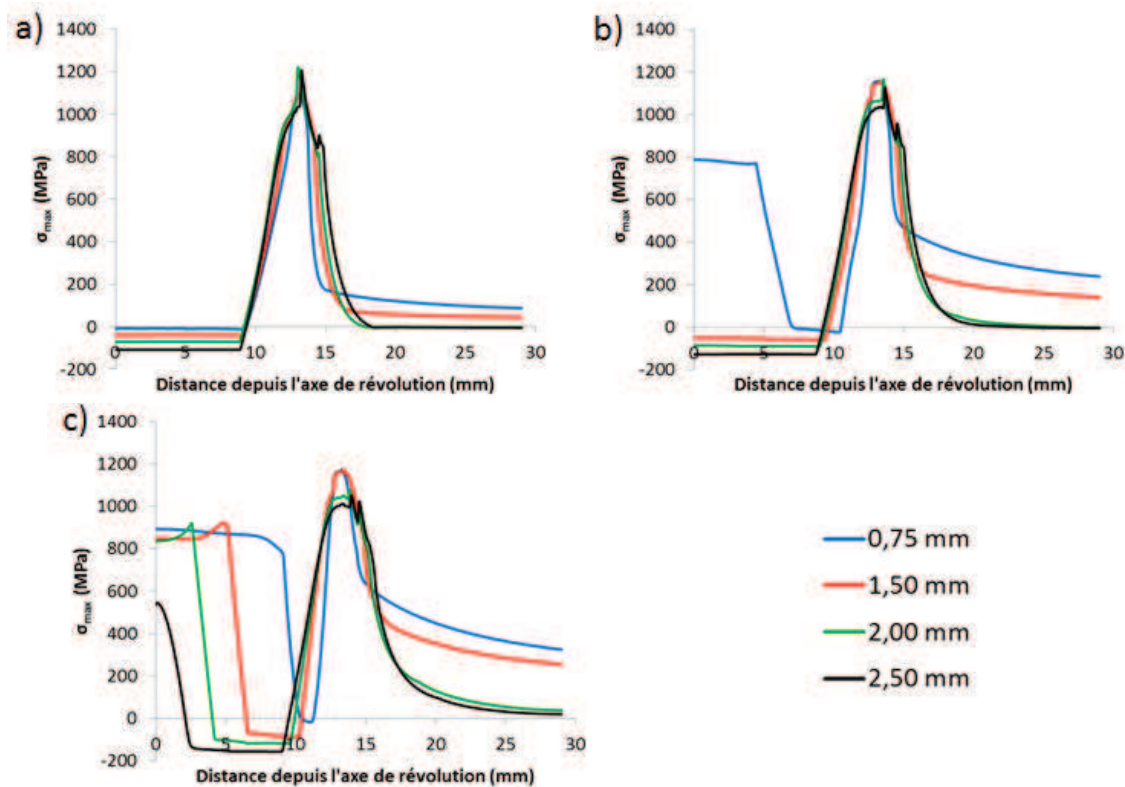
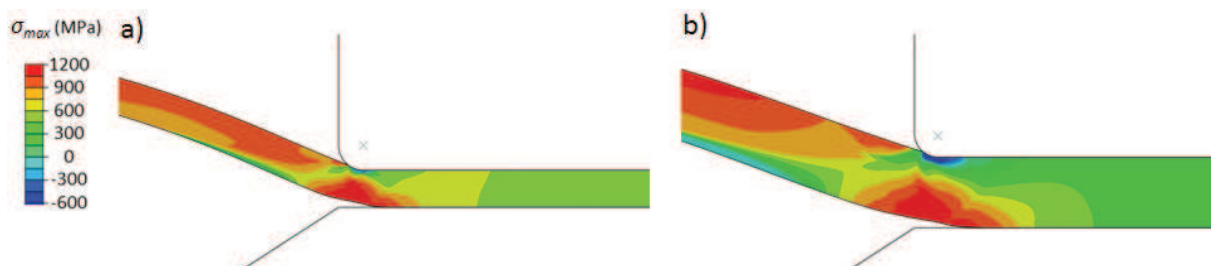
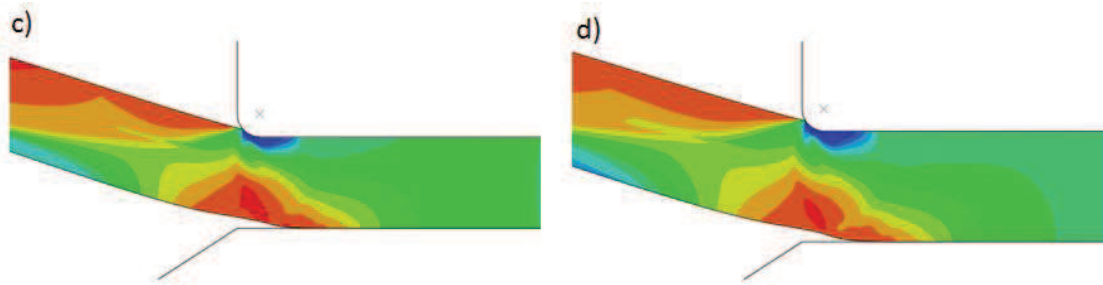


Figure IV.2.8. Profils de contrainte maximale principale le long de la fibre interne des disques aux valeurs de flèche : a) 1 mm, b) 2 mm et c) 3 mm.

Dans la zone d'intérêt, les profils de contraintes sont qualitativement similaires et, à flèche donnée, les valeurs maximales de contrainte diminuent légèrement à mesure que l'épaisseur de disque augmente. Comme le montrent les cartographies iso-valeurs de contrainte maximale principale présentées à la Figure IV.2.9, la forme générale des concentrations de contrainte dans la zone d'intérêt varie peu avec l'épaisseur, par contre les variations de contraintes dans l'épaisseur sont plus marquées quand l'épaisseur du disque augmente.

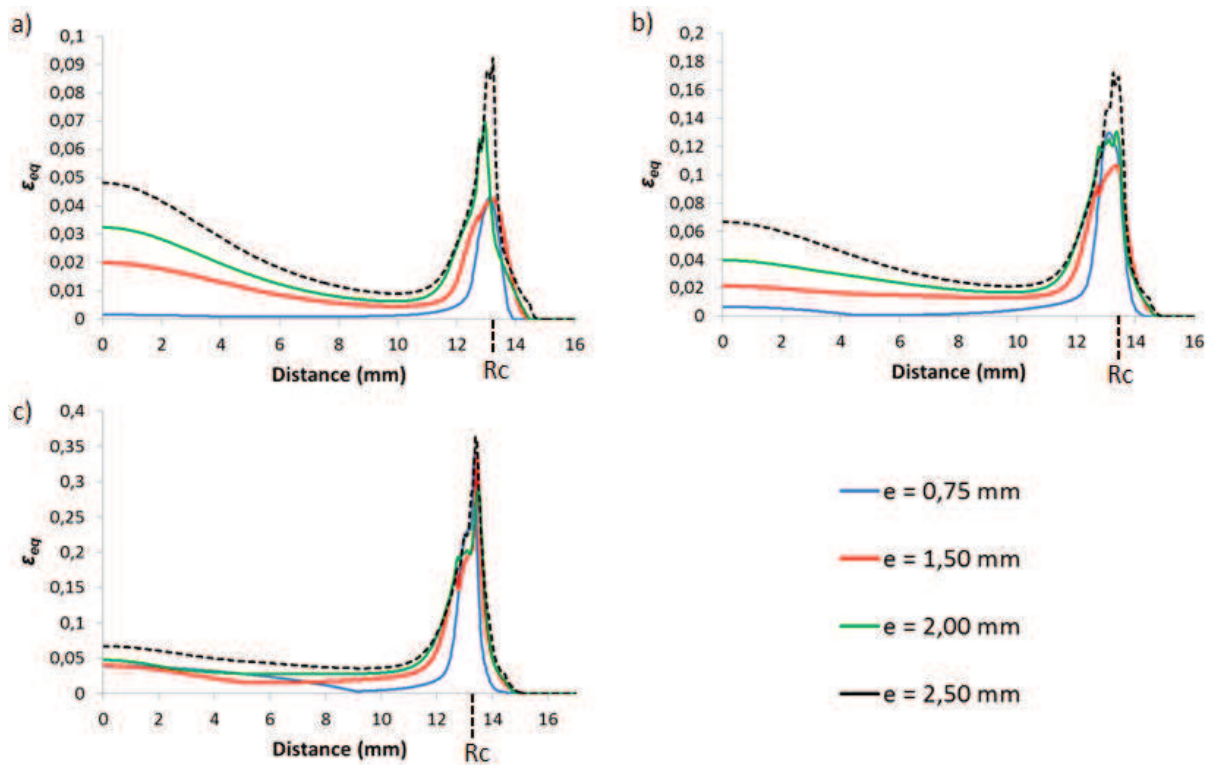






**Figure IV.2.9.** Cartographies iso-valeurs de la contrainte maximale principale dans la zone d'intérêt à la valeur de flèche de 3 mm pour les épaisseurs : a) 0,75 mm ; b) 1,50 mm ; c) 2,00 mm et d) 2,50 mm.

Les profils de déformation plastique équivalente sur la fibre interne des disques (Figure IV.2.10) montrent qu'à flèche constante l'augmentation de l'épaisseur conduit à l'obtention de niveaux de déformation plus importants au pôle comme dans la zone d'intérêt et ce notamment dans le cas de l'épaisseur 2,50 mm.



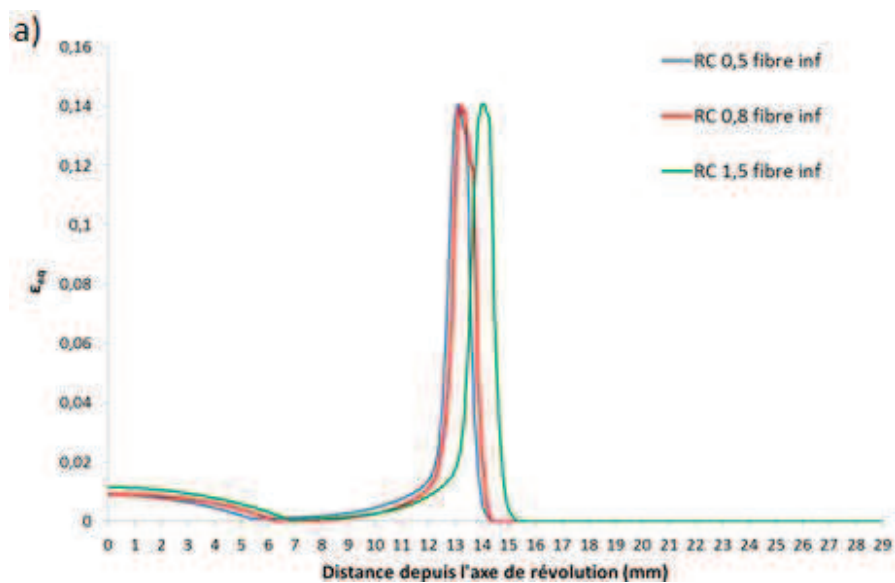
**Figure IV.2.10.** Profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne des disques avec localisation du rayon de courbure  $R_c$  aux valeurs de flèche : a) 1 mm, b) 2 mm et c) 3 mm.

### IV.2.c. Influence du rayon de courbure de l'outil de maintien

Trois rayons de courbure sont considérés :  $R_{c1} = 0,5$  mm d'après la norme ISO [3],  $R_{c2} = 0,8$  mm et  $R_{c3} = 1,5$  mm (voir paragraphe IV.2.c.). La modélisation est réalisée dans le cas des épaisseurs 0,75 mm et 1,50 mm, l'analyse des champs mécaniques est effectuée pour les valeurs de pression  $P_{ruptH2}$  et  $P_{ruptHe}$  et le jeu de paramètres V2T5 est utilisé.

La Figure IV.2.11 présente les profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne du disque (voir Figure IV.2.1) pour différents rayons de courbure dans le cas de l'épaisseur 0,75 mm. A  $P_{ruptH2}$  la forme et le niveau du « pic » de localisation de déformation n'évoluent pas quand le rayon de courbure augmente, un simple décalage étant observé pour le plus grand rayon.

A  $P_{ruptHe}$  l'augmentation du rayon de courbure conduit à une forte diminution des valeurs maximales de déformation, qui passent de  $\epsilon_{eq} = 0,6$  avec le rayon de courbure  $R_{c1}$  à  $\epsilon_{eq} = 0,3$  avec  $R_{c3}$ . De plus, on remarque qu'avec le rayon de courbure  $R_{c1}$  la déformation est nettement plus localisée qu'avec les autres rayons, ce qui se traduit par un pic plus étroit.



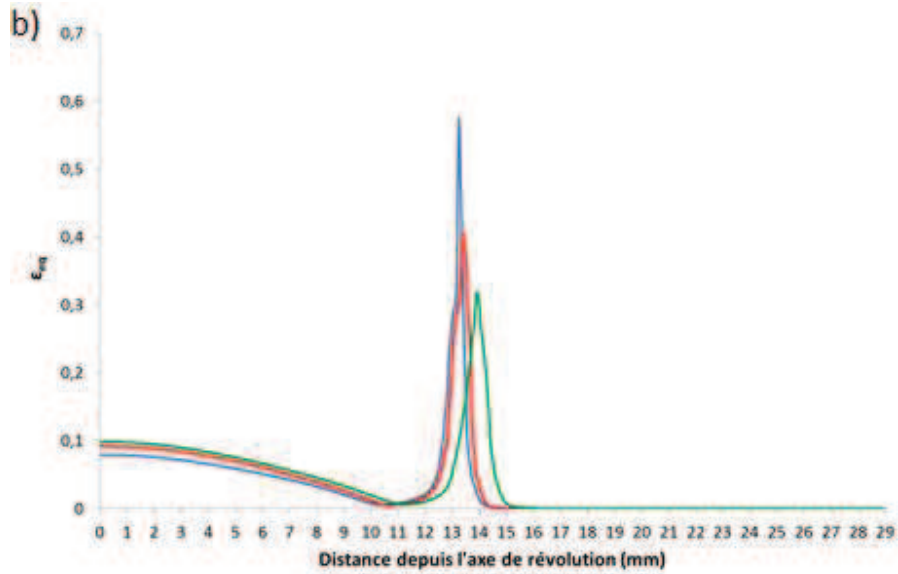
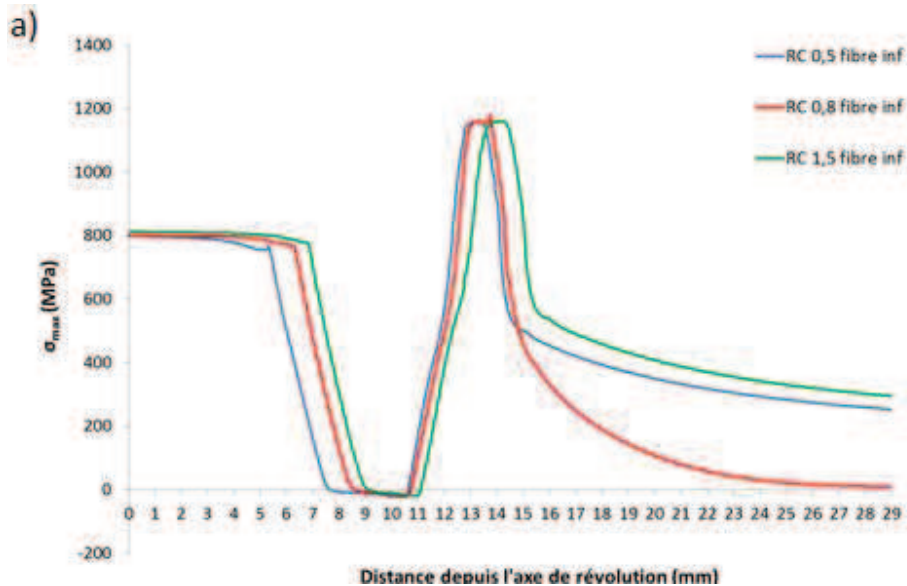
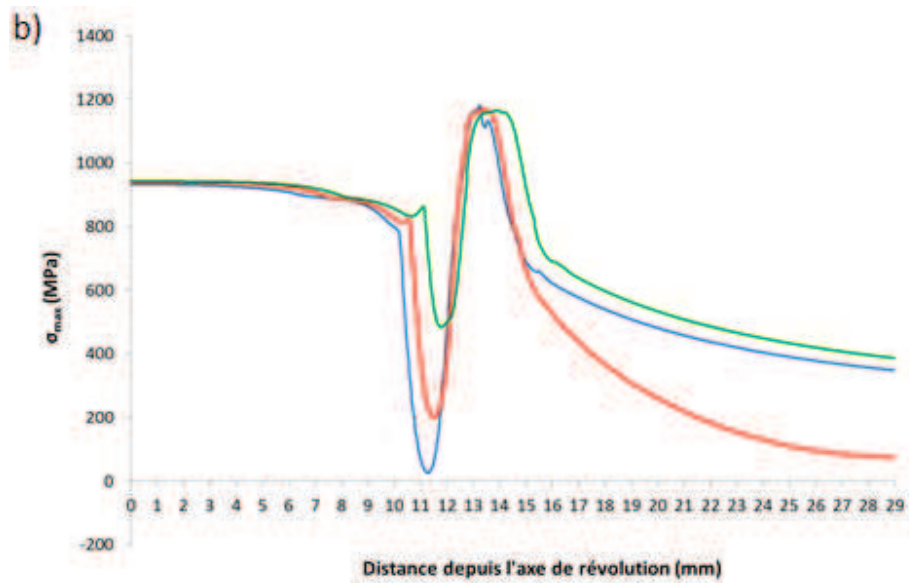


Figure IV.2.11. Profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne sur l'épaisseur 0,75 mm aux pressions : a)  $P_{ruptH2} = 29$  MPa et b)  $P_{ruptHe} = 54$  MPa.

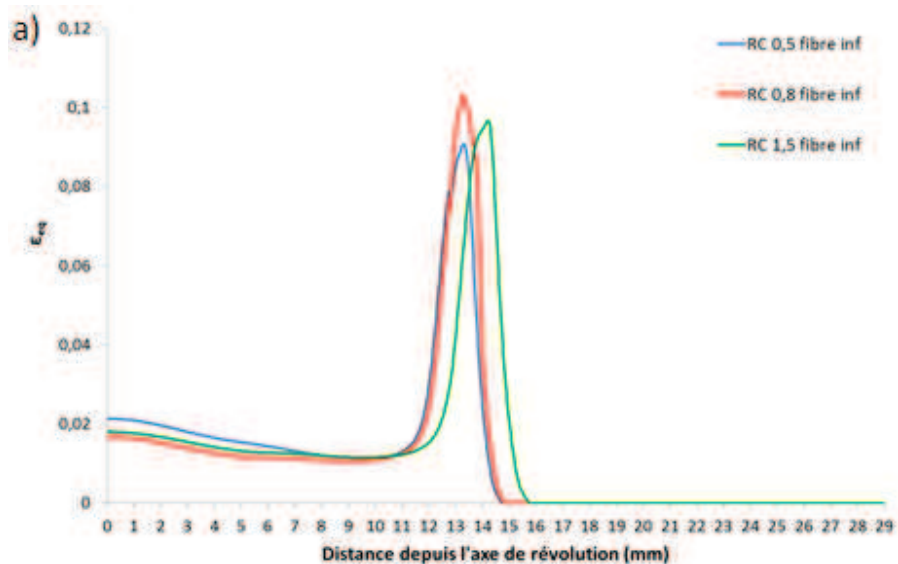
La Figure IV.2.12 présente les profils de contrainte principale maximale le long de la fibre interne du disque. A  $P_{ruptH2}$  les profils dépendent peu du rayon, par contre pour  $P_{ruptHe}$ , des variations plus fortes sont observées. Compte-tenu du caractère saturant de la loi d'écrouissage utilisée, les niveaux de contrainte maximale n'augmentent pas dans les zones de forte localisation de la déformation plastique.





**Figure IV.2.12.** Profils de contrainte maximale principale le long de a fibre interne sur l'épaisseur 0,75 mm aux pressions : a)  $P_{ruptH2} = 29$  MPa et b)  $P_{ruptHe} = 54$  MPa.

Dans le cas de l'épaisseur 1,50 mm (Figure IV.2.13), une légère augmentation des déformations maximales quand le rayon de courbure augmente est obtenue à  $P'_{ruptH2} = 53$  MPa, mais à  $P'_{ruptHe} = 108$  MPa, la déformation maximale diminue nettement quand le rayon de courbure augmente (de  $\epsilon_{eq} = 0,65$  avec le rayon de courbure  $Rc_1$  à  $\epsilon_{eq} = 0,4$  avec le rayon de courbure  $Rc_3$ ). Contrairement à l'épaisseur 0,75 mm, la largeur du pic de localisation reste quasiment identique.



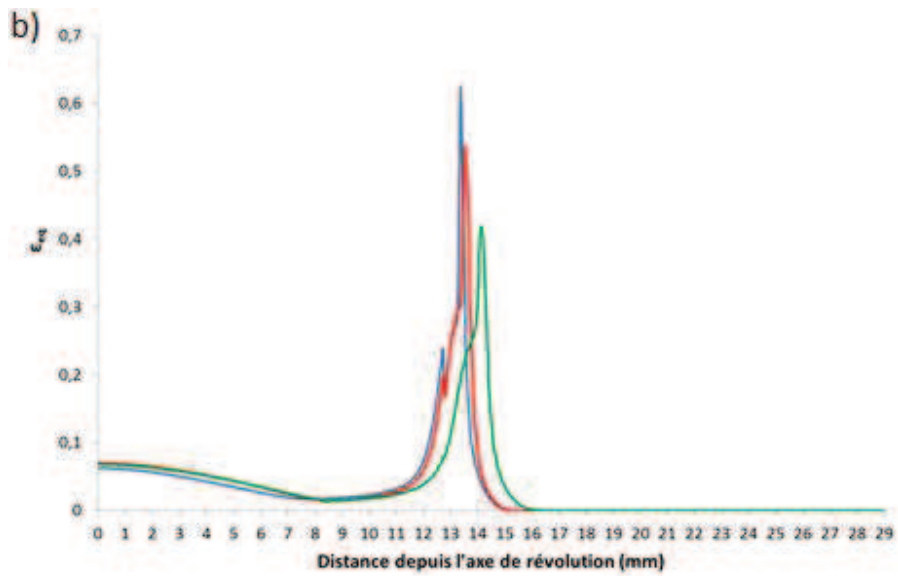
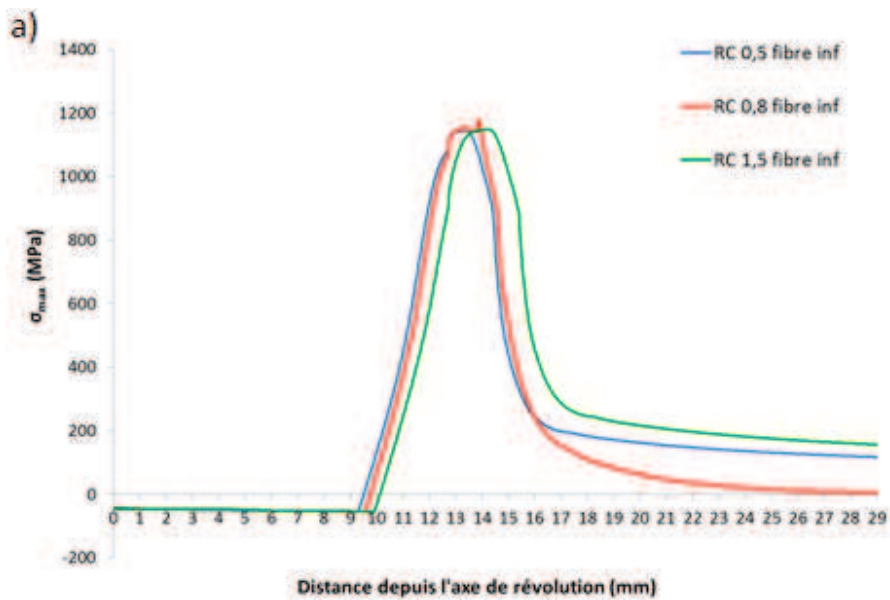
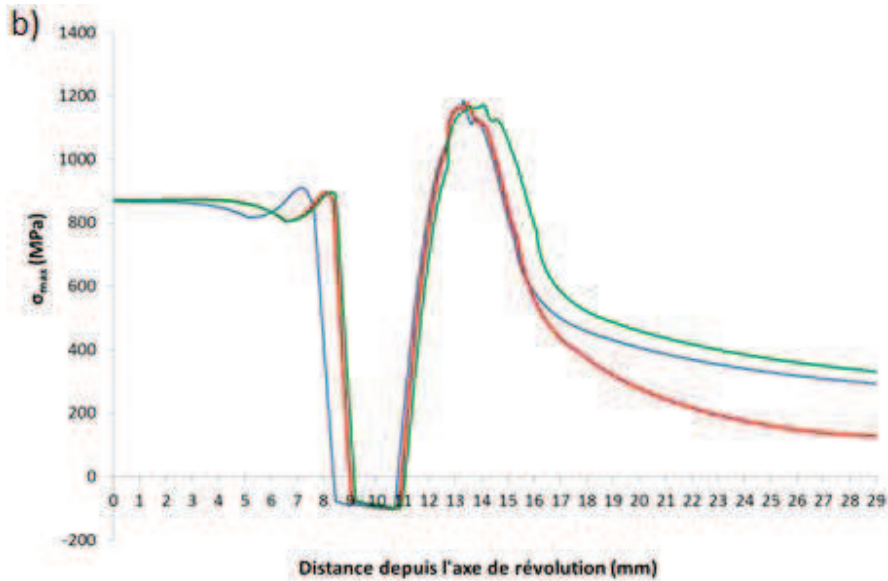


Figure IV.2.13. Profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne sur l'épaisseur 1,50 mm aux pressions : a)  $P'_{ruptH2} = 53$  MPa et b)  $P'_{ruptHe} = 108$  MPa.

Les profils de contrainte principale maximale le long de la fibre interne du disque sur l'épaisseur 1,50 mm (Figure IV.2.14) varient peu avec le rayon, avec une localisation légèrement plus grande pour le rayon le plus élevé.





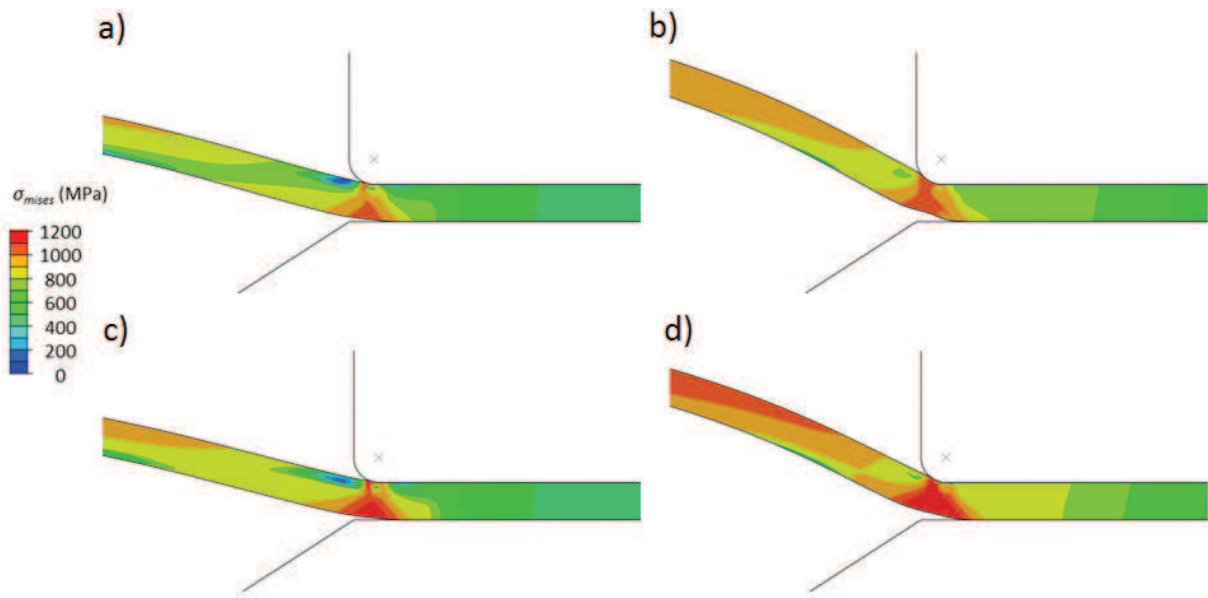
**Figure IV.2.14.** Profils de contrainte maximale principale le long de la fibre interne sur l'épaisseur 1,50 mm aux pressions : a)  $P_{ruptH2} = 53$  MPa et b)  $P_{ruptHe} = 108$  MPa.

En considérant les profils de déformation plastique équivalente et de contrainte principale maximale à  $P_{ruptHe}$  pour les deux épaisseurs de disque (pour l'épaisseur 0,75 mm Figure IV.2.11-b et Figure IV.2.12-b ; pour l'épaisseur 1,50 mm Figure IV.2.13-b et Figure IV.2.14-b), on remarque que l'augmentation du rayon de courbure conduit à un décalage d'environ 1 mm entre les profils pour les rayons de courbures  $R_{c1}$  et  $R_{c3}$ . Ce décalage correspondant au décalage spatial du point de contact entre la fibre externe et la bride supérieure quand le rayon de courbure augmente.

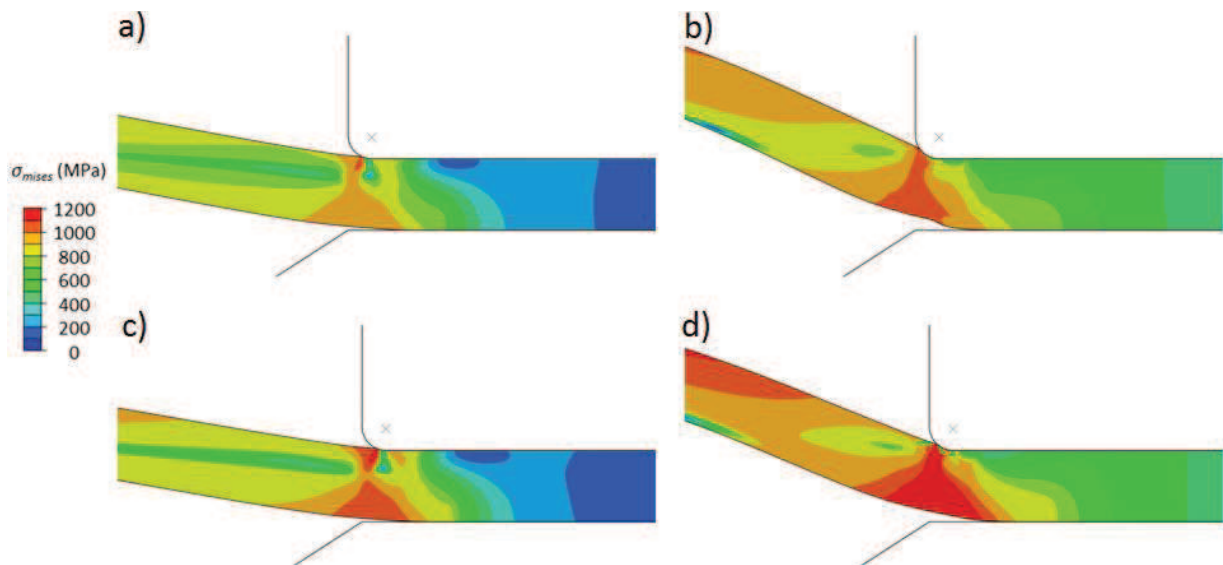
#### IV.2.d. Influence des paramètres d'écroutissage

La Figure IV.2.15 et la Figure IV.2.16 comparent, pour les épaisseurs 0,75 mm et 1,50 mm et aux pressions  $P_{ruptH2}$  et  $P_{ruptHe}$  (voir Tableau IV.2.1) les cartographies iso-valeurs dans la zone d'intérêt de la contrainte de von Mises ( $\sigma_{mises}$ ) pour les jeux de paramètres d'écroutissage V2T5 et V2T6. Les résultats sont analogues pour les deux épaisseurs et montrent que la répartition des contraintes est similaire avec cependant des niveaux de contraintes plus élevées d'environ 100 MPa avec le jeu de paramètres V2T6 par rapport au jeu de paramètres V2T5, ce qui est cohérent avec l'écart entre les courbes d'écroutissage de la Figure IV.1.3.



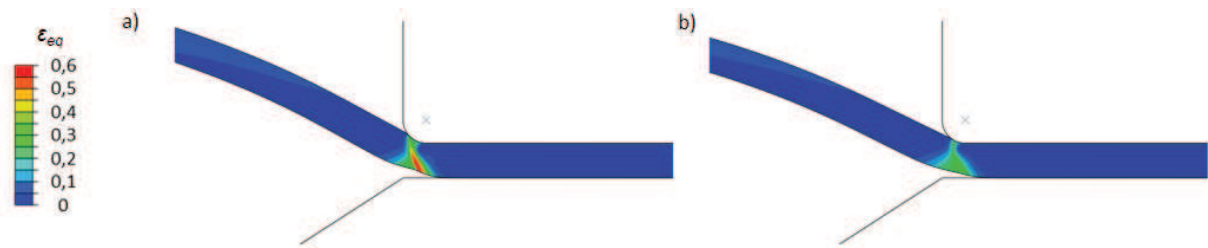


**Figure IV.2.15.** Cartographies iso-valeurs de  $\sigma_{mises}$  dans la zone d'intérêt du disque d'épaisseur 0,75 mm : a) et c) à  $P_{ruptH2} = 29$  MPa et b) et d) à  $P_{ruptHe} = 54$  MPa. Avec les jeux de paramètres : a) et b) V2T5 ; c) et d) V2T6.



**Figure IV.2.16.** Cartographies iso-valeurs de  $\sigma_{mises}$  dans la zone d'intérêt du disque d'épaisseur 1,50 mm : a) et c) à  $P'_{ruptH2} = 53$  MPa et b) et d) à  $P'_{ruptHe} = 108$  MPa. Avec les jeux de paramètres : a) et b) V2T5 ; c) et d) V2T6.

En représentant la distribution de déformation plastique équivalente dans le cas des disques d'épaisseur 0,75 mm à  $P_{ruptHe} = 53$  MPa (Figure IV.2.17), les résultats montrent que les niveaux de déformation sont plus importants et que les déformations sont plus localisées avec les paramètres V2T5.



**Figure IV.2.17.** Cartographies iso-valeurs de déformation plastique équivalente dans les disques d'épaisseur 0,75 mm à  $P_{ruptHe} = 54$  MPa : a) paramètres V2T5 et b) paramètres V2T6.

L'analyse numérique de l'essai de disque a ainsi montré l'hétérogénéité des champs de contraintes et de déformation dans le disque. Compte-tenu des caractéristiques géométriques de l'essai, l'équibiaxialité du champ de contraintes et son homogénéité en épaisseur n'est assurée que dans une zone limitée du disque au voisinage du pôle, et pour les faibles épaisseurs de disque. La zone d'intérêt pour le risque de rupture potentielle est dans un état biaxial de contraintes positives. Elle correspond à une zone de forte localisation de déformation et de contraintes, lieu des valeurs maximales de contraintes principales. Dans cette zone, située en vis-à-vis de la zone de contact entre le disque et la bride supérieure, les champs mécaniques présentent également des variations importantes dans l'épaisseur du disque. Les distributions de contraintes sont qualitativement similaires dans cette zone pour les différentes épaisseurs, mais l'analyse effectuée a permis de comparer l'évolution des champs entre des valeurs de pression correspondant à la rupture expérimentale sous hydrogène et sous hélium, montrant l'accentuation de la localisation avec l'augmentation de la pression appliquée. Les simulations montrent que l'épaisseur modifie fortement la forme de la courbe flèche-pression, mais que les distributions de contraintes varient relativement peu dans la zone d'intérêt, en raison du caractère saturant de la loi d'érouissage utilisée. Cependant la précision sur les valeurs de contraintes dépend de celle de la loi d'érouissage.

L'influence du rayon de courbure de la bride supérieure sur la distribution des champs mécaniques a été soulignée. L'augmentation du rayon conduit à un décalage spatial de la distribution de contrainte et à une diminution de l'acuité de la localisation de la déformation plastique équivalente. Le rayon réel dans les essais pouvant évoluer au cours du temps en raison de l'érouissage de la bride supérieure, il convient de le vérifier régulièrement.

### IV.3. Modélisation de l'endommagement ductile

#### IV.3.a. Description du modèle

La modélisation d'un endommagement de type ductile nécessite de prendre en compte la nucléation de pores au cours de la déformation plastique. Ce type de modélisation implique de prendre en compte le volume des pores dans le matériau et pour se faire, la modélisation doit être effectuée sur une géométrie 3D.

Pour éviter un calcul trop volumineux, la géométrie 3D est réduite à un secteur angulaire de  $5^\circ$  décrit dans un repère cylindrique  $(r, \theta, z)$ , obtenu par révolution de la géométrie 2D. Les faces verticales, notées  $f_1$  et  $f_2$  respectivement situées à  $\theta_1 = 0^\circ$  et  $\theta_2 = 5^\circ$ , délimitent le secteur angulaire et sont soumises à des conditions aux limites périodiques : le déplacement vertical ( $U_z(t)$ ) de la face  $f_1$  est asservi au déplacement vertical de la face  $f_2$ , ceci assure que les faces  $f_1$  et  $f_2$  restent parallèles entre elles au cours de la simulation. Ainsi la relation de déplacement selon  $U_z$  pour chaque point des faces  $f_1$  et  $f_2$  s'exprime par :

$$U_z(r, \theta_1, z) = U_z(r, \theta_2, z) \quad (\text{IV.3.1})$$

Le secteur angulaire modélisé est présenté à la Figure IV.3.1. La simulation utilise les éléments C3D10, éléments tétraédriques à 10 nœuds et 4 points d'intégration. La taille des éléments finis est fixée de telle façon qu'il y ait 3 éléments dans l'épaisseur aux extrémités du disque et 10 éléments dans l'épaisseur dans la zone de rupture expérimentale, voir la Figure IV.3.2. Cette proportionnalité est conservée pour toutes les épaisseurs de disque, la taille des éléments en fonction de l'épaisseur du disque est donnée au Tableau IV.3.2. Le comportement utilisé est celui utilisant le jeu de paramètres V2T5 (Figure IV.1.3).

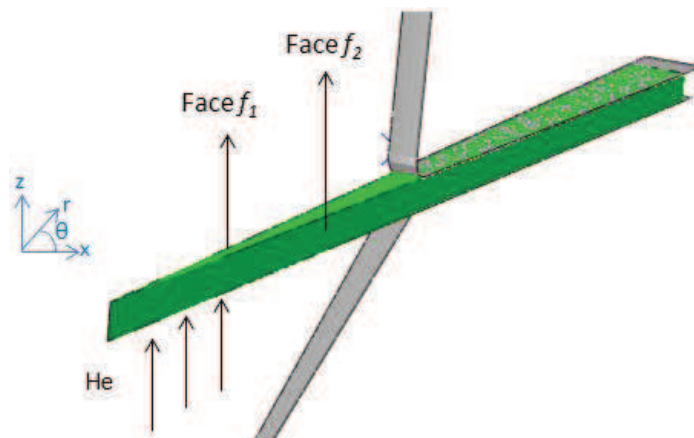
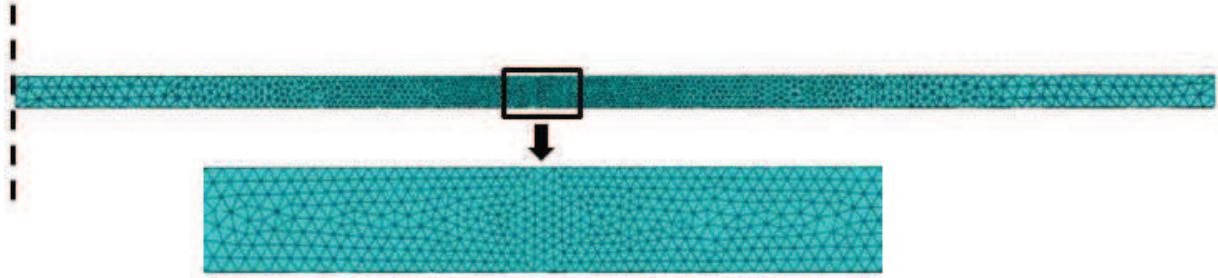


Figure IV.3.1. Représentation du secteur angulaire pour la simulation de l'endommagement ductile : exemple pour l'épaisseur 0,75 mm.

**Tableau IV.3.1.** Tailles des éléments finis utilisés dans la modélisation de l'essai de disque.

Epaisseur disque (mm)	Tailles des éléments ( $\mu\text{m}$ )		Nombre d'éléments
	Extrémités du disque	Zone de rupture	
0,75	0,25	0,075	42176
1,50	0,50	0,050	12181
2,00	0,66	0,066	6955
2,50	0,83	0,083	4975



**Figure IV.3.2.** Maillage du disque : exemple pour l'épaisseur  $e = 0,75$  mm.

### IV.3.b. Modélisation de l'endommagement ductile

La modélisation de la rupture ductile est assurée à l'aide du modèle de GTN (Gurson-Tvergaard-Needleman) [6] assurant le couplage entre la porosité et la déformation plastique. L'endommagement ductile est associé à la création de petites porosités sphériques dans le matériau. Ces porosités sont associées au développement de la déformation plastique. La fraction volumique des pores est définie par :

$$f = \frac{V_{pore}}{V_{tot}} , \quad (IV.3.2)$$

où  $V_{pore}$  est le volume de pores compris dans un élément de volume  $V_{tot}$ .

La surface de charge est défini dans le cadre de l'endommagement ductile par :

$$g = \left( \frac{\sigma_{eq}}{\sigma_Y} \right)^2 + 2q_1 f \cosh \left( \frac{3q_2 P_H}{2\sigma_Y} \right) - (1 + q_3 f^2) = 0 , \quad (IV.3.3)$$

avec  $q_1$ ,  $q_2$  et  $q_3$  paramètres matériaux.

La variation de la porosité est donnée par :

$$\Delta f = (1 - f) tr[\Delta \varepsilon_p] + \Delta f_n , \quad (IV.3.4)$$

avec  $\Delta\varepsilon_p$  incrément de déformation plastique et  $\Delta f_n$  création de nouvelles porosités.

Sachant que  $f_n$  est lié à  $\varepsilon_p$  :

$$\Delta f_n = A_n \Delta \overline{\varepsilon_p^m} , \quad (\text{IV.3.5})$$

où  $A_n$  est la probabilité de nucléation d'un pore défini telle que :

$$A_n = \frac{A_0}{\sqrt{2\pi s_n}} \exp \left[ -\frac{(\overline{\varepsilon_p^m} - \varepsilon_n)^2}{2s_n^2} \right] , \quad (\text{IV.3.6})$$

où  $\varepsilon_n$  et  $s_n$  sont des paramètres statistiques de nucléation de pores et  $A_0$  une constante de normalisation.

Les paramètres utilisés sont données au Tableau IV.3.2, il s'agit de paramètres standard tels que suggérés par Tvergaard [6] et dont l'utilisation dans la simulation d'essais de traction sur un acier AISI 4135 a été validé par Liu [4].

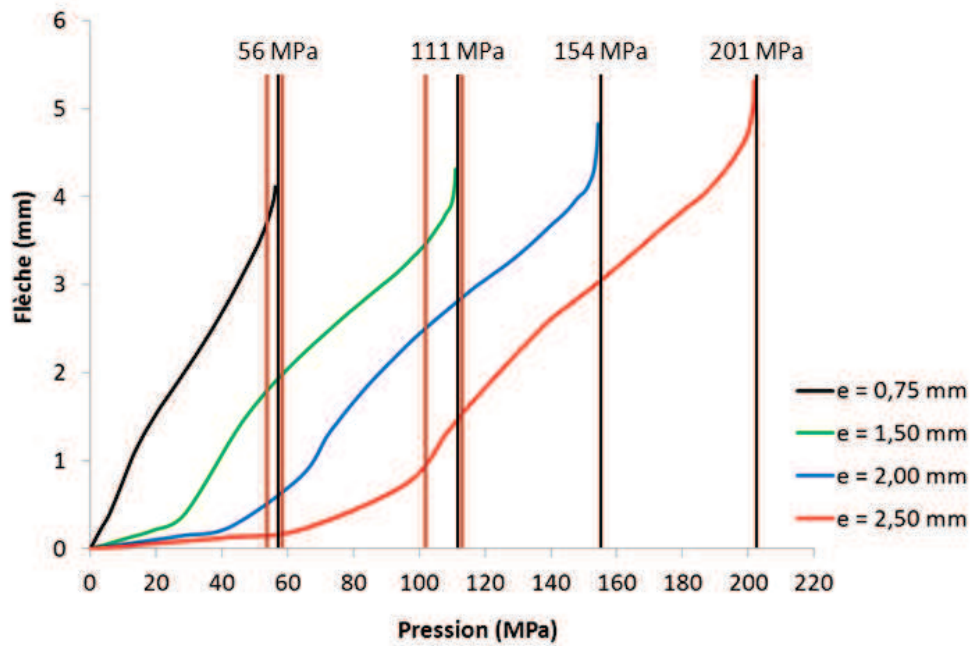
**Tableau IV.3.2.** Paramètres utilisés pour la modélisation de l'endommagement ductile [6].

$q_1$	$q_2$	$q_3$	$f_0$	$\varepsilon_n$	$s_n$	$A_0$
1,5	1	2,25	0	0,3	0,1	0,04

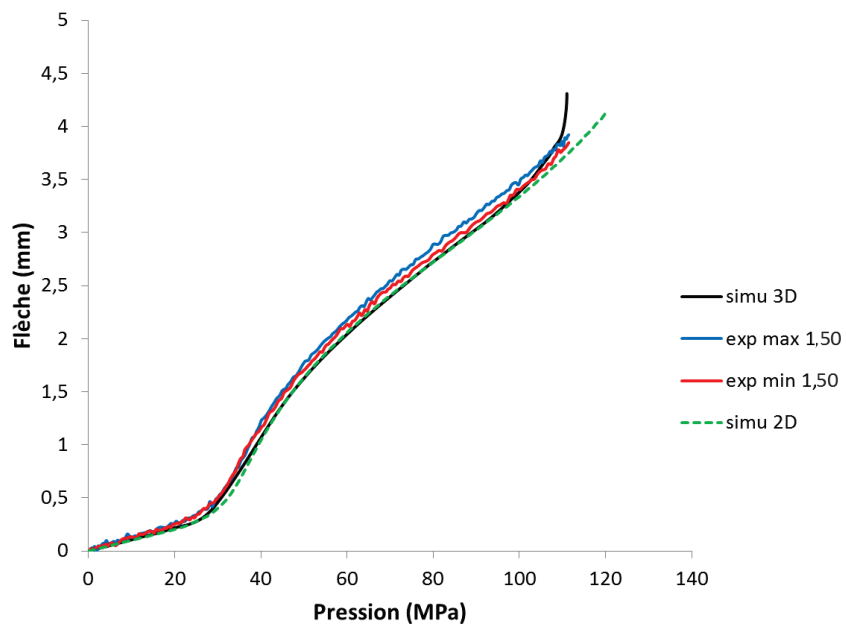
### IV.3.c. Extrapolation aux très fortes épaisseurs

La Figure IV.3.3 regroupe les courbes flèche-pression obtenues pour des simulations sur les épaisseurs 0,75 ; 1,50 ; 2,00 et 2,50 mm. Les traits verticaux rouges de part et d'autre des courbes des épaisseurs 0,75 et 1,50 mm font référence aux pressions de rupture maximale et minimale expérimentales obtenues sous He. Les traits noirs, eux, représentent les pressions de rupture potentielles obtenues par simulation. On considère que la rupture dans la simulation correspond à la tangente à la courbe flèche-pression en fin de calcul. Les résultats ainsi obtenus indiquent que pour les épaisseurs 2,00 et 2,50 mm, les pressions de rupture potentielles sous He sont respectivement de  $P_{rupt1} = 154$  MPa et  $P_{rupt2} = 201$  MPa.

Les courbes flèche-pression simulées ont été comparées aux courbes flèche-pression mesurées expérimentalement sous He pour l'épaisseur 1,50 mm. La comparaison pour l'épaisseur 0,75 mm n'étant pas possible en raison d'une indisponibilité du capteur de déplacement (voir paragraphe III.2.b). Les résultats sont montrés à la Figure IV.3.4. Malgré une légère sous-estimation des flèches, cohérente avec les résultats obtenus dans la modélisation 2D, la simulation reproduit très bien l'allure de la courbe expérimentale, ainsi que les niveaux de flèche et de pression en fin d'essai où l'endommagement ductile devient prépondérant.

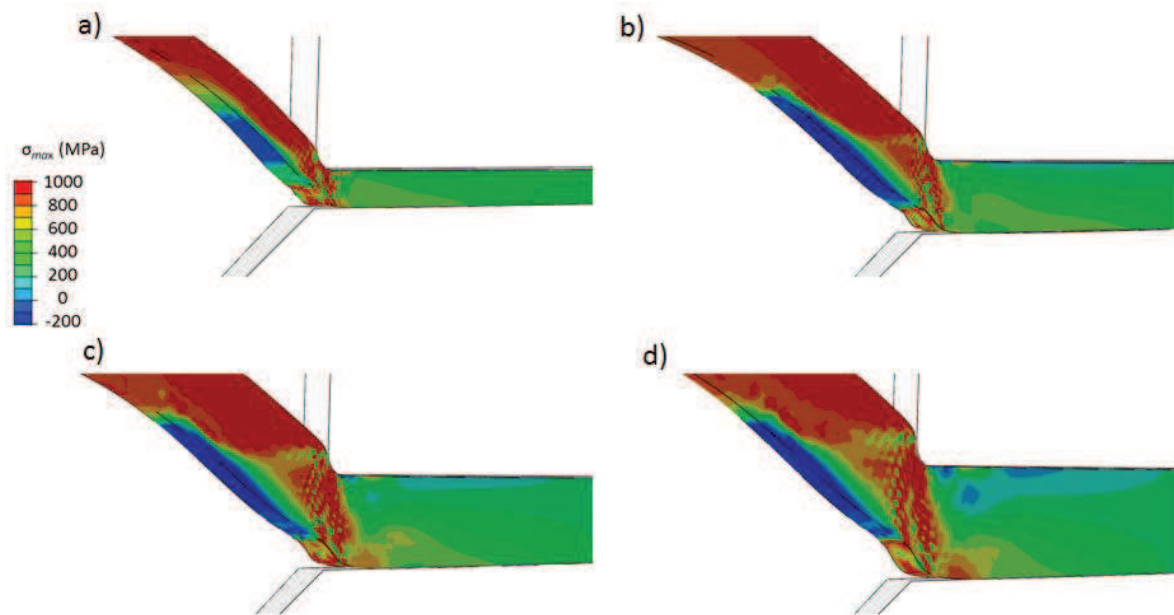


**Figure IV.3.3.** Courbes flèche-pression numériques et pressions de rupture potentielles sous He (traits noirs) calculées par la modélisation 3D avec endommagement ductile de l'essai de disque.



**Figure IV.3.4.** Comparaison des courbes flèche-pression expérimentales et numériques pour l'épaisseur 1,50 mm





**Figure IV.3.5.** Cartographies iso-valeurs de la contrainte maximale principale en fin de calcul dans les disques d'épaisseurs : a) 0,75 mm ; b) 1,50 mm ; c) 2,00 mm et d) 2,50 mm.

Cependant, par manque de temps, l'optimisation du maillage n'a pu être effectuée dans la zone d'intérêt, ce qui conduit à des champs de contraintes perturbés, comme illustré par la figure Figure IV.3.5 montrant les cartographies iso-valeurs de la contrainte maximale principale pour les épaisseurs 0,75 ; 1,50 ; 2,00 et 2,50 mm. Les résultats dans cette zone sont donc à considérer avec précaution.

#### ***IV.4. Conclusions***

La modélisation par éléments finis de l'essai de disque a permis d'étudier la distribution des contraintes et des déformations dans le disque au cours de l'essai. La comparaison des résultats expérimentaux et numériques, à l'aide de courbes flèche-pression et de surfométrie, ont montré que la simulation par éléments finis de l'essai de disque assure une description satisfaisante du comportement du disque et notamment dans la zone de rupture potentielle.

De plus, les simulations ont mis en évidence l'influence de l'épaisseur du disque, de la loi d'érouissage du matériau, ainsi que la géométrie de la cellule d'essai sur les résultats d'essai de disque, la précision et la fiabilité des calculs dépendant de la précision des données expérimentales.

Enfin la modélisation de l'endommagement ductile a permis d'évaluer les pressions de rupture sous He, des valeurs très élevées pouvant être obtenues grâce à la simulation de l'essai pour des disques de très fortes épaisseurs (2,00 et 2,50 mm).

En vue d'appréhender les pressions de rupture sous hydrogène, due à la rupture fragile d'un disque déformé plastiquement, il convient d'abord de prendre en compte la présence d'hydrogène dans les simulations, ce qui fait l'objet du chapitre suivant.

### ***Bibliographie***

- [1] Abaqus, User Subroutine Reference Manual, paragraph 1.1.19 (2008).
- [2] Y. Charles *et al.* *Numerical modeling of the Disk Pressure Test up to failure under gaseous hydrogen*. Journal of Materials Processing Technology, 2012. **212**: p.1761-1770.
- [3] ISO 11114-4, 2005. *Transportable gas cylinders – compatibility of cylinder and valve materials with gas contents – Part 4: Test methods for selecting metallic materials resistant to hydrogen embrittlement*.
- [4] P.F. Liu and J.Y. Zheng. *Finite element analysis of tensile behavior of ductile steel with defects*. Journal of Failure Analysis and Prevention, 2010. **10**: p.212-217.
- [5] M. Wang *et al.* *Determination of the critical hydrogen concentration for delayed fracture of high strength steel by constant load test and numerical calculation*. Corrosion Science, 2006. **48**: p.2189-2202
- [6] V. Tvergaard. *Influence of voids on shear band instabilities under plane strain conditions*. International Journal of Fracture, 1981. **17**: p.389-407.

## V. Modélisation des interactions hydrogènes-matériau

Les développements numériques réalisés au LSPM [1, 2] (voir paragraphe I.4.a.iii.) pour prendre en compte les interactions hydrogène-matériau dans les simulations par éléments finis ont été utilisés et adaptés au cas de l'essai de disque.

Dans un premier temps, l'approche de la rupture par zones cohésives à l'échelle macroscopique a été considérée à l'aide des outils numériques disponibles, l'hydrogène n'intervenant que de manière phénoménologique dans la contrainte critique de la loi traction-séparation des zones cohésives.

Une approche plus complète du couplage diffusion-piégeage de l'hydrogène avec les champs mécaniques (voir paragraphe I.4.a.iii.) a ensuite été utilisée [3], d'abord à l'échelle globale du disque sur le modèle 2D axisymétrique, puis à l'échelle d'un agrégat polycristallin 3D virtuel dans la zone de rupture potentielle, afin d'analyser les hétérogénéités locales de concentration d'hydrogène. Enfin, une piste de critère d'initiation de rupture basée sur les champs de contrainte dans la microstructure est proposée.

### V.1. Approche de la rupture par zones cohésives dépendant de l'hydrogène

Le modèle utilisé est celui des travaux antérieurs de Charles *et al.* [1] et rappelé au paragraphe I.4.b. Le chargement se fait à pression imposée avec une vitesse de pressurisation constante  $v_p = 0,1$  MPa/min correspondant à une vitesse de  $1,6 \cdot 10^{-3}$  MPa/s, jusqu'à une valeur maximale de 35 MPa, pression de rupture expérimentale maximale obtenue sous  $H_2$ . L'évolution de la concentration en hydrogène absorbée en surface inférieure du disque  $C_0$  est pilotée par la pression d'hydrogène appliquée  $P_{H_2}$ , et sa diffusion dans le matériau est purement fickienne. La prévision de la rupture est obtenue via des éléments cohésifs insérés a priori dans le maillage, et dont la loi traction-ouverture dépend de la concentration locale en hydrogène. Les éléments cohésifs sont définis dans une procédure utilisateur spécifique du code (« UEL » pour UserELEMENT).

La diffusion de l'hydrogène dans le code de calcul Abaqus [3] a été rendu possible en utilisant le degré de liberté thermique pour la concentration d'hydrogène diffusif. Il s'agit du schéma standard d'Abaqus 'coupled temperature-displacement' permettant de résoudre le problème couplé mécanique-diffusion en considérant l'analogie entre les équations de Fick et de Fourier [1, 4].

### V.1.a. Identification des paramètres

Les paramètres mécaniques du matériau sont ceux utilisés dans la simulation d'essai de disque présentée au chapitre IV et sont rappelés au Tableau V.1.1

**Tableau V.1.1.** Paramètres matériaux utilisés.

Jeu de paramètres	Constantes élastiques		Paramètres d'érouissage		
	$E$ (MPa)	$\nu$	$A$ (MPa)	$R_{sat}$ (MPa)	$C$
V2T5	206 000 [5]	0,3 [6]	771	237	30,8
V2T6			855	361	12,5

L'absorption de l'hydrogène depuis la surface inférieure du disque est gérée par les paramètres matériau  $K$  et l'énergie d'activation  $\Delta H$ , et la diffusion est régie par le coefficient de diffusion de l'hydrogène  $D_H$ . Les valeurs de ces paramètres sont issues des travaux de Charles *et al.* [1]. La prise en compte de l'hydrogène dans la rupture est assurée à l'aide de paramètres identifiés sur des résultats expérimentaux macroscopiques :

- $\sigma_{max}^0$ , contrainte à rupture du matériau sans hydrogène ;
- $\Delta_G$ , paramètre phénoménologique régissant la dépendance à l'hydrogène de la contrainte critique des éléments cohésifs.

$\sigma_{max}^0$  et  $\Delta_G$  ont été identifiés pour l'épaisseur de disque 0,75 mm avec les paramètres d'érouissage V2T5 afin que pressions de rupture numérique et expérimentale coïncident. Les valeurs des paramètres hydrogène utilisés sont données au Tableau V.1.2 :

**Tableau V.1.2.** Paramètres hydrogène utilisé pour la prise en compte de l'hydrogène sur la rupture [1].

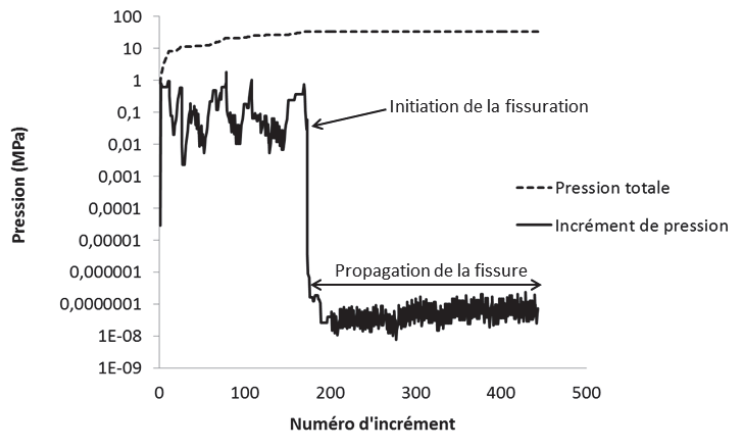
$K$ (Pa <sup>-1/2</sup> )	$\Delta H$ (kJ/mol)	$D_H$ (m <sup>2</sup> /s)	$\sigma_{max}^0$ (MPa)	$\Delta_G$ (MPa)
$1,7 \cdot 10^{-2}$	-27,2	$3 \cdot 10^{-11}$	1200	29000

### V.1.b. Calcul des pressions de rupture

Le Tableau V.1.3 récapitule les simulations avec zones cohésives réalisées, les calculs durent en moyenne 8h pour l'épaisseur 0,75 mm et 10h pour l'épaisseur 1,50 mm. Le maillage est constitué d'éléments CAX4T, éléments bi-linéaires à 4 nœuds, 4 points d'intégration et un degré de liberté thermique, utilisé pour la diffusion de l'hydrogène.

**Tableau V.1.3.** Récapitulatif des simulations avec zones cohésives réalisées.

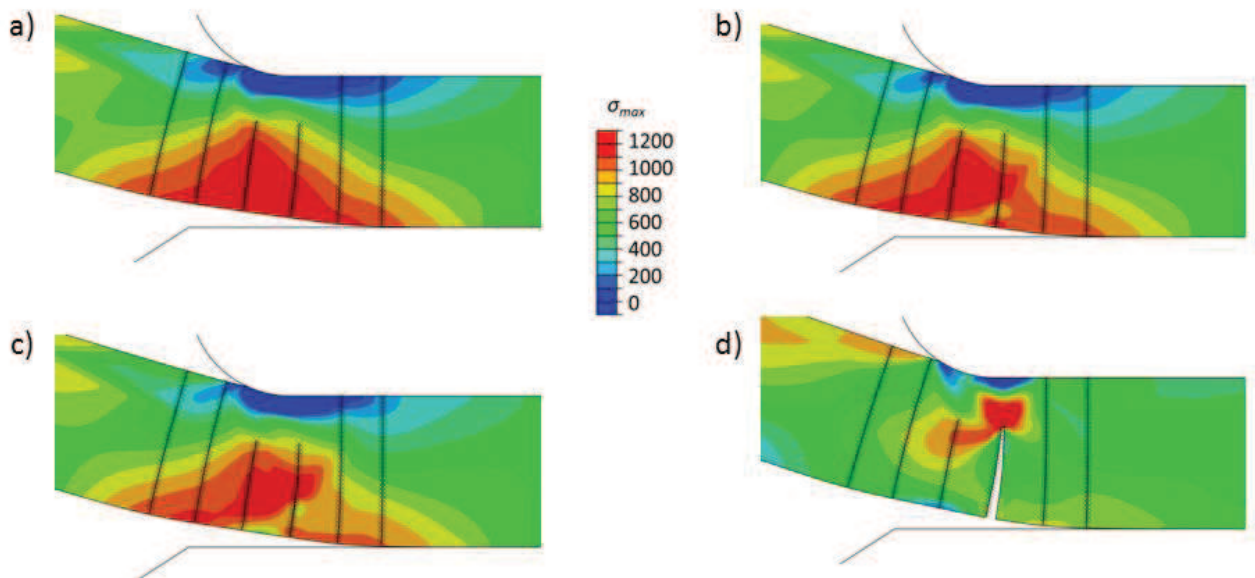
Simulation	Paramètres d'érouissage	Epaisseur du disque (mm)	Nombre d'éléments standards	Nombre d'éléments cohésifs
S1	V2T5	0,75	50890	1490
S2	V2T5	1,50	106142	1528
S3	V2T6	0,75	50890	1490
S4	V2T6	1,50	106142	1528



**Figure V.1.1.** Détection numérique de la rupture dans la simulation S1.

La rupture numérique correspond à une propagation brutale de la fissure qui est détectée suite à une importante chute de valeur de l'incrément de pression entre deux pas de calculs (Figure V.1.1). La variation brusque d'incrément de pression au cours du calcul conduit à des problèmes de convergence numérique des calculs, il est ainsi nécessaire d'optimiser manuellement les paramètres de contrôle de convergence d'Abaqus pour la réalisation de ces calculs, ce qui nécessite un savoir-faire particulier.

La Figure V.1.2 présente l'évolution de la contrainte principale maximale au cours de l'ouverture de la fissure dans le cas de la simulation S1. On remarque que l'ouverture numérique de la fissure ne concerne qu'une seule ligne d'éléments cohésifs.



**Figure V.1.2.** Evolution de la contrainte principale maximale dans la simulation S1 à différents incréments de calculs : a) 169, b) 172, c) 173 (ouverture de la ZC) et d) 443 (fin de calcul).

La Figure V.1.3 rassemble les résultats des simulations et les compare aux valeurs de pressions obtenues expérimentalement. L'identification des paramètres cohésifs ayant été effectuée dans la simulation S1, il est ainsi cohérent d'obtenir une pression de rupture numérique en accord avec la pression de rupture expérimentale dans ce cas. En revanche on remarque que l'extrapolation à l'épaisseur 1,50 mm réalisée dans la simulation S2 présente une sous-estimation de la valeur de pression de rupture, soulignant une condition de rupture trop sévère avec les paramètres cohésifs identifiés.

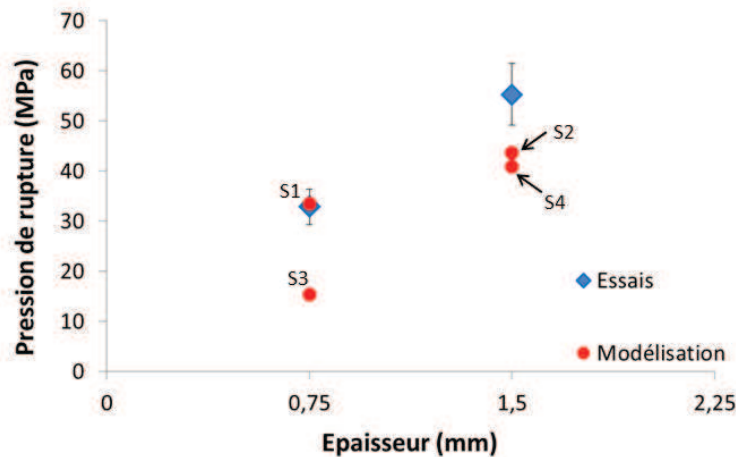


Figure V.1.3. Comparaison des pressions de rupture expérimentale (avec barres d'erreur) et numérique.

De même, pour les simulations S3 et S4, les calculs ont dans un premier temps donné des pressions de rupture numériques trop faibles, ce qui s'explique par la loi de comportement utilisée, les paramètres d'écroutissement V2T6 présentant des niveaux de contraintes plus élevés d'environ 100 MPa dans la zone d'intérêt (voir paragraphe IV.2.a.). Pour améliorer les résultats, le paramètre  $\sigma_{max}^0$  a été réajusté, cet ajustement ayant permis d'obtenir une bonne corrélation entre essais et simulations et ce à la fois pour les simulations S3 et S4 pour des valeurs de  $\sigma_{max}^0 = 1300$  MPa et  $\sigma_{max}^0 = 1350$  MPa (Tableau V.1.4). Ces résultats illustrent la dépendance de la modélisation avec zones cohésives aux paramètres utilisés, pour chaque simulation effectuée le couple de paramètres cohésifs  $\sigma_{max}^0$  et  $\Delta G$  n'est pas unique et doit être ajusté. Compte-tenu de la dispersion expérimentale du comportement mécanique du matériau, et du manque de connaissance sur l'évolution des contraintes critiques avec la concentration d'hydrogène, le caractère prédictif des pressions de rupture obtenues est ainsi peu fiable.

Tableau V.1.4. Pressions de rupture numériques obtenues pour différentes valeurs de  $\sigma_{max}^0$  dans les simulations S3 et S4 et comparaison aux pressions de rupture expérimentales.

Simulation	$\sigma_{max}^0$ (MPa)	$P_{rupt}$ num. (MPa)	$P_{rupt}$ exp. (MPa)
S3	1250	15,3	$29,47 \pm 1,29$
	1300	25,0	
	1350	33,5	
	1400	43,3	
S4	1250	44,0	$53,20 \pm 3,78$
	1300	54,1	



1350	54,6
1400	54,5

### V.1.c. Discussion

L'utilisation de zones cohésives dans la simulation de l'essai de disque avec des lois phénoménologiques très simples (élastoplasticité isotrope, diffusion fickienne, loi traction-séparation empirique) a permis d'obtenir une description cohérente des pressions de rupture, ce qui, ajouté aux prévisions de déformées et de courbes flèche-pression (voir chapitre IV), est relativement satisfaisant avec un nombre limité de paramètres.

Cependant, un tel modèle basé sur des éléments cohésifs pour la prévision de la fragilisation par l'hydrogène présente d'importantes limitations notamment sur la localisation de la fissuration, les zones cohésives devant être implantées par avance et étant rectilignes, cette formulation ne permet pas de représenter l'aspect ramifié de la fissuration dans la microstructure (voir paragraphe III.3.b.). De plus, les paramètres numériques contrôlant les conditions d'ouverture des zones cohésives présentent un fonctionnement délicat du point de vue de la convergence numérique et l'utilisation de zones cohésives nécessite un ajustement partiel sur les résultats attendus, limitant ainsi le caractère prédictif du modèle.

Par ailleurs, la fissuration induite par l'hydrogène nécessite au préalable le transport de l'hydrogène, qui est affecté par les champs mécaniques (notamment le gradient de pression hydrostatique et la déformation plastique), il est donc important de tenir compte du couplage diffusion-piégeage-plasticité au lieu de la simple diffusion de Fick. Grâce aux travaux récents d'implantation dans Abaqus des procédures numériques nécessaires [2], cette approche a pu être développée pour la simulation de l'essai de disque, à la fois à l'échelle globale et à l'échelle d'un agrégat polycristallin, afin d'ouvrir la voie à des critères d'initiation de rupture tenant compte des hétérogénéités de la microstructure.

## V.2. Simulation numérique du couplage diffusion-piégeage-plasticité

### V.2.a. Modèle utilisé

La modélisation est basée sur l'équation de transport I.3.19 (cf § I.3.b) qui prend en compte la sensibilité de la diffusion de l'hydrogène au gradient du champ de pression hydrostatique et le piégeage de l'hydrogène par la déformation plastique :

$$\frac{C_T (1 - \theta_T) + C_L}{C_L} \frac{\partial C_L}{\partial t} + \nabla \cdot (-D_L \nabla C_L - D_L C_L \kappa_p \nabla P_H) + \theta_T \frac{dN_T}{d\varepsilon_p} \frac{\partial \varepsilon_p}{\partial t} = 0, \quad (\text{V.2.1})$$

où  $D_L$  est le coefficient de diffusion de l'hydrogène ( $m^2/s$ ) ;  $\kappa_p$  un paramètre matériau ( $MPa^{-1}$ ) ;  $N_T$  et  $\theta_T$  sont, respectivement, le nombre de sites de piégeages et leur taux de recouvrement. La concentration d'hydrogène  $C_{TotalH} = C_T + C_L$  en un point du matériau est considérée comme constituée d'une partie diffusive  $C_L$ , et d'une partie piégée  $C_T$  en équilibre thermodynamique, ce qui, selon la relation proposée par Oriani [7] conduit à (équation I.3.14 du paragraphe I.3.b) :

$$C_T = \frac{K_T N_T C_L}{N_L + K_T C_L} \quad (V.2.2)$$

où  $K_T$  représente la constante d'équilibre de la réaction de piégeage (supposée instantanée).

### V.2.b. Evolution du piégeage avec la déformation plastique

L'implémentation de la relation entre la population d'hydrogène piégé et la déformation plastique équivalente dans Abaqus a été réalisée par Nguyen [2]. La loi utilisée repose sur la formulation proposée par Oriani [7] donnée au paragraphe V.2.a (équation V.2.2) et postulant une relation directe entre  $N_T$  et la déformation plastique :

$$C_T = \frac{N_T(\varepsilon_p) K_T C_L}{K_T C_L + N_L} \quad (V.3.2)$$

Cette formulation utilise une évolution de  $N_T$  en fonction  $\varepsilon_p$  saturante

La Figure V.2.1 présente une illustration de la loi de piégeage utilisée avec l'évolution de  $C_T$  en fonction de  $\varepsilon_p$ . Les paramètres utilisés sont donnés au Tableau V.2.1 et sont issus des travaux de Krom [8] et Sofronis [9] sur le fer pur.

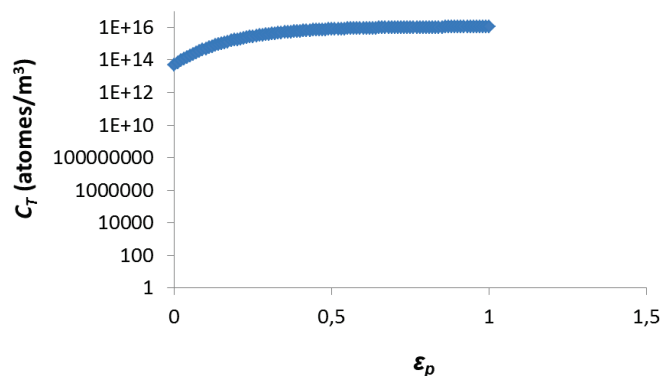


Figure V.2.1. Loi de piégeage saturante utilisée dans les simulations.

### V.2.c. Stratégie de calcul

L'implémentation de la résolution du problème couplé mécanique-diffusion (équation (V.2.1)) a été effectuée par Charles et Nguyen, qui ont développé deux routines utilisateurs [1, 2] : une UMAT pour le comportement mécanique du matériau et surtout pour le calcul du gradient de pression ; et une UMATHT pour le flux d'hydrogène. Les simulations sont basées sur une stratégie numérique similaire à celle utilisée par Oh *et al.* [4].

La routine UMATHT calcule le flux d'hydrogène diffusif, qui dépend à la fois du piégeage et de la pression hydrostatique (voir équation (V.2.1)). Le couplage simultané mécanique-diffusion nécessite de définir le comportement mécanique du matériau dans une routine UMAT, même pour les lois standard disponibles dans le code. Le schéma de résolution général et la stratégie de calcul sont présentés à la Figure V.2.2 [2].

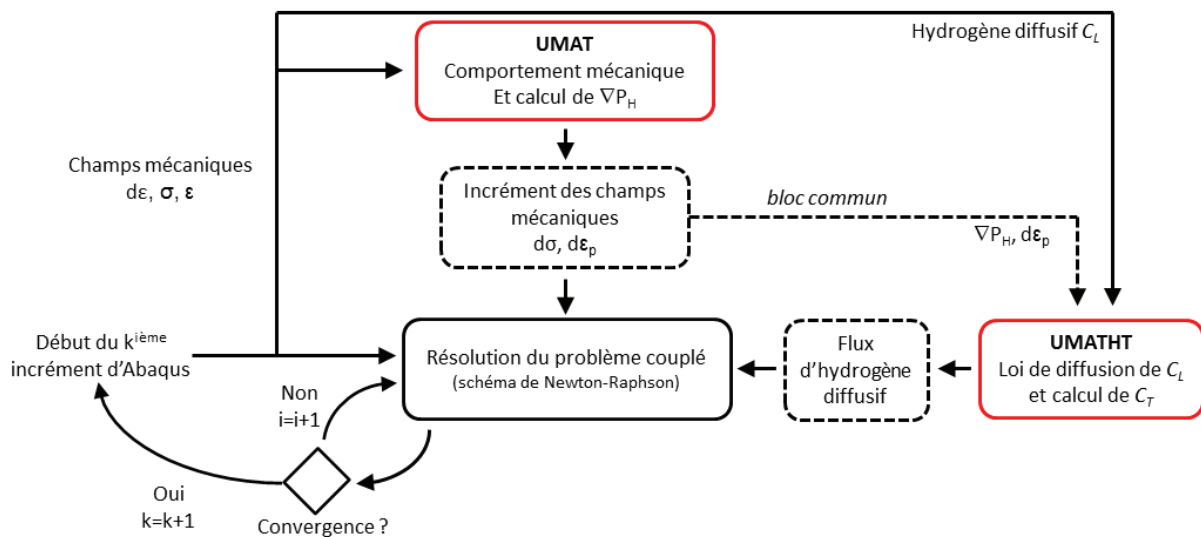


Figure V.2.2. Schéma de résolution du problème couplé mécanique-diffusion dans Abaqus [2].

Les paramètres hydrogène (Tableau V.2.1) utilisés dans les simulations sont :

- le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans le matériau  $D_L$ , dont la valeur pour l'acier AISI 4135 est celle utilisée dans des précédents travaux de Charles *et al.* [1] ;
- $\kappa_p$ , paramètre matériau de diffusion,  $N_L$  nombre de sites interstitiels et  $N_T(\epsilon_p)$  nombre de sites de piégeage. En l'absence de données expérimentales pour l'acier AISI 4135, les valeurs sont issues des travaux de Krom [8] et Sofronis [9] sur le fer pur, de même structure cristalline (c.c.) que l'acier bainitique de l'étude. Néanmoins, l'effet spécifique des carbures et de la morphologie de la bainite ne sont alors pas pris en compte, ce qui nécessiterait des approfondissements spécifiques dépassant le cadre de la présente étude. Les calculs sont donc à considérer ici comme une étape de mise en place numérique d'outils spécifiques au couplage hydrogène-plasticité dans le cas de l'essai de disque, les paramètres matériaux pouvant être modifiés ultérieurement selon les informations expérimentales disponibles.

**Tableau V.2.1.** Paramètres hydrogène liés à la diffusion et au piégeage.

$D_L$ (m <sup>2</sup> /s)	$\kappa_p$ (MPa <sup>-1</sup> )	$N_L$ (atomes/m <sup>3</sup> )	$N_T(\epsilon_p)$ (atomes/m <sup>3</sup> )
$3.10^{-11}$ [1]	0,001 [8]	$8,46.10^{29}$ [9]	$10^{23,26-2,33e^{-5},5\epsilon_p}$ [8]

### V.3. Application à la simulation 2D axisymétrique de l'essai de disque

Les calculs sont réalisés sur l'épaisseur 0,75 mm et durent en moyenne 2h. Le maillage est constitué de 55062 éléments CAX4T, éléments bi-linéaires à 4 nœuds, 4 points d'intégration et un degré de liberté thermique, utilisé pour la diffusion de l'hydrogène. Les paramètres mécaniques utilisés sont donnés au Tableau V.1.1.

Le chargement en hydrogène est réalisé en appliquant une pression d'hydrogène ( $P_{H_2}$ ) croissante sur la face inférieure du disque. La vitesse de pressurisation est constante et de  $v_p = 0,1$  MPa/min correspondant à une vitesse de  $1,6.10^{-3}$  MPa/s, jusqu'à une valeur maximale de 35 MPa, pression de rupture expérimentale maximale obtenue sous H<sub>2</sub>. L'évolution de la concentration en hydrogène absorbée en surface inférieure du disque  $C_0$  est pilotée par la pression d'hydrogène appliquée  $P_{H_2}$  selon la formulation de Langmuir (voir paragraphe I.4.b).

#### V.3.a. Distribution de l'hydrogène diffusif

La Figure V.3.1 présente l'évolution de la distribution d'hydrogène diffusif dans la zone de rupture potentielle du disque. A mesure que la pression augmente, la population en hydrogène diffusif devient de plus en plus importante sur la face inférieure du disque et reste quasiment nulle sur la face supérieure. En représentant la cartographie iso-valeur d'hydrogène diffusif dans l'ensemble du disque en fin de calcul à 35 MPa, correspondant à la pression de rupture expérimentale maximale (voir Figure V.3.2), on constate que les valeurs maximales de la concentration maximale d'hydrogène diffusif sont situées en dehors de la zone de rupture potentielle.

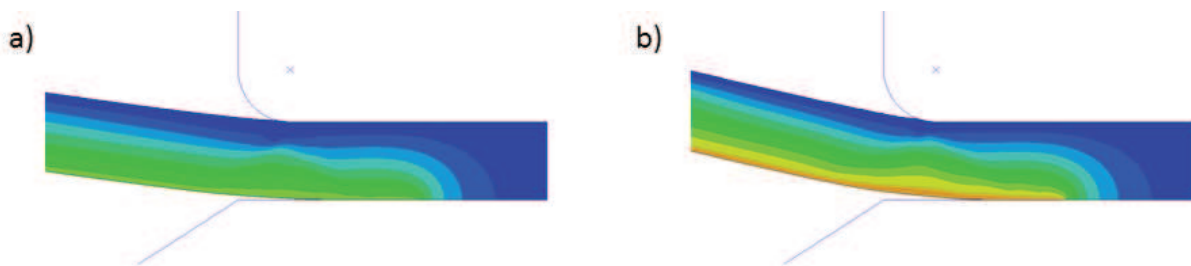




Figure V.3.1. Cartographies iso-valeurs de la concentration normalisée d'hydrogène diffusif dans la zone de rupture potentielle à différentes pressions : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.



Figure V.3.2. Distribution de la concentration normalisée d'hydrogène diffusif dans l'ensemble du disque à 35 MPa.

La distribution d'hydrogène diffusif dans le disque est causée d'une part par la condition aux limites en contrainte reliant directement  $C_0$  et  $P_{H2}$  sur la face inférieure du disque - et y provoque donc « naturellement » des valeurs importantes de  $C_L$  - et, d'autre part, à l'état de contraintes sur la face inférieure du disque (voir paragraphe IV.2.a.). La comparaison de la Figure V.3.2 avec la distribution du champ de pression hydrostatique (dont les valeurs négatives correspondent à des états d'expansion) montre que les régions de forte concentration d'hydrogène diffusif se corrélient assez bien avec les zones de forte variation de pression, conformément à la dépendance du flux au gradient de pression tel qu'introduit dans la modélisation.

Contrairement à une diffusion purement fickienne, le calcul montre ainsi les perturbations de la concentration d'hydrogène dans l'épaisseur du disque par les champs mécaniques qui s'y développent pendant l'essai de disque.



Figure V.3.3. Distribution de la pression hydrostatique dans l'ensemble du disque à 35 MPa.

### V.3.b. Distribution d'hydrogène piégé et total dans le disque

La Figure V.3.4 présente pour deux valeurs de pression, la distribution d'hydrogène piégé, qui se corrélient très bien avec la distribution de déformation plastique équivalente présentée au paragraphe IV.2.a.

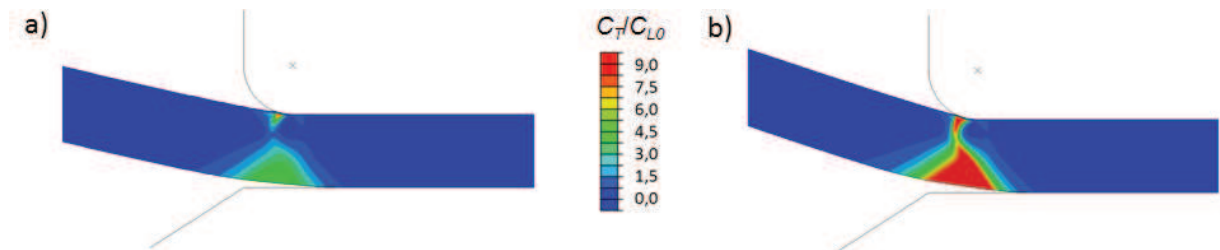


Figure V.3.4. Cartographies iso-valeurs de la concentration normalisée d'hydrogène piégé aux pressions : a) 25 MPa ; b) 35 MPa.

La Figure V.3.5 montre la distribution d'hydrogène total dans la zone d'intérêt. On constate que que la zone de rupture expérimentale est celle contenant le maximum de concentration d'hydrogène total, ce qui est dû à la conjonction de fortes valeurs d'hydrogène diffusif et d'hydrogène piégé à cause des fortes déformations plastiques localisées dans cette zone. .

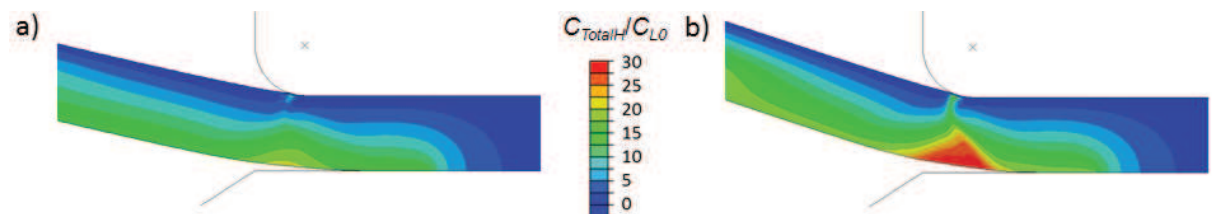


Figure V.3.5. Cartographies iso-valeurs de la concentration normalisée d'hydrogène total aux pressions : a) 25 MPa ; b) 35 MPa.

La Figure V.3.6 présente la distribution d'hydrogène total dans l'ensemble du disque, illustrant l'effet des variations très fortes de la part relative de  $C_T$  par rapport  $C_L$ .

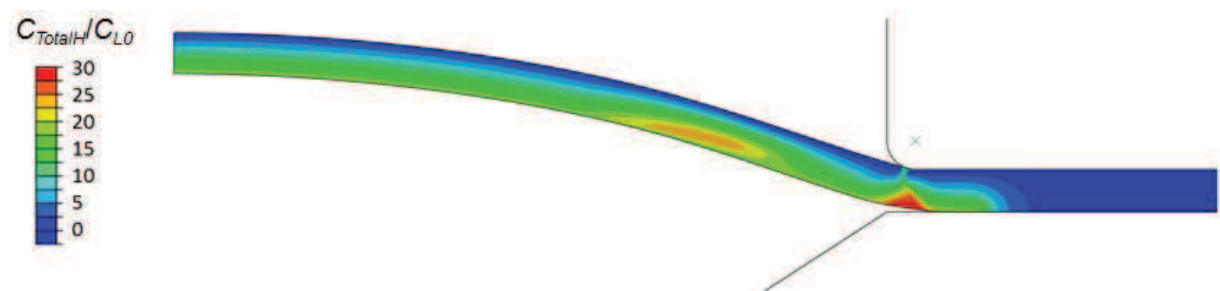


Figure V.3.6. Distribution de la concentration d'hydrogène normalisée total dans l'ensemble du disque à 35 MPa.



L'ensemble des résultats obtenus dans le cadre de la simulation 2D globale montrent la fonctionnalité du couplage utilisé et l'adaptabilité des travaux de Nguyen [2] au cas de l'essai de disque de façon globale. L'approche couplée mécanique-diffusion a ainsi permis d'étudier et de mettre en relation l'évolution des champs d'hydrogène avec les champs mécaniques et notamment dans la zone de rupture expérimentale potentielle. Ces outils offrent ainsi une base satisfaisante pour appréhender la simulation l'essai de disque à l'échelle d'un agrégat polycristallin.

## V.4. Application à des agrégats polycristallins virtuels 3D

### V.4.a. Comportement mécanique du monocristal

Les mécanismes de déformation dépendent de l'orientation à l'échelle cristalline, chaque grain suit un comportement élasto-viscoplastique anisotrope. Le comportement cristallin élastique utilise les constantes élastiques  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$  en raison de la symétrie cubique et le comportement cristallin plastique est basé sur le glissement plastique sur chaque système de glissement.

Chaque système de glissement  $s$  est défini par son vecteur normal  $\mathbf{n}^s$  et sa direction de glissement  $\mathbf{m}^s$ . La vitesse de glissement  $\dot{\gamma}^s$  sur ce système de glissement est une fonction de la cission résolue sur le système  $s$   $\tau^s$  utilisant une description en loi puissance [10] :

$$\dot{\gamma}^s = \dot{a} \left( \frac{\tau^s}{g^s} \right) \left| \frac{\tau^s}{g^s} \right|^{n-1}, \quad (\text{V.4.1})$$

$\dot{a}$  étant une vitesse de déformation de référence et  $n$  un coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation.  $g^s$  est la cission critique actuelle du système de glissement considéré. Le taux d'écroissage est écrit :

$$\dot{g}^s = \sum_{\substack{\text{slip} \\ \text{system } s'}} h_{ss'} \dot{\gamma}^{s'}, \quad (\text{V.4.2})$$

où  $h_{ss}$  et  $h_{ss', s' \neq s}$  représentent respectivement l'auto-écrouissage et l'écrouissage latent, définis par :

$$h_{ss', s' \neq s} = q h_{ss} \quad \text{et} \quad h_{ss} = h_0 \operatorname{sech}^2 \left| \frac{h_0 \gamma}{\tau_s - \tau_0} \right|, \quad (\text{V.4.3})$$

$\gamma$  est le glissement plastique cumulé sur l'ensemble des systèmes de glissement,  $q$ ,  $\tau_s$ ,  $\tau_0$  et  $h_0$  sont des paramètres d'érouissage à identifier.

Le matériau polycristallin est composé de grains bainitiques constitués de cristaux de fer  $\alpha$ , seuls les 12 systèmes de glissement  $\langle 110 \rangle \{111\}$  sont considérés. Les orientations sont choisies de manière aléatoire, compte-tenu de la faible texture cristallographique globale observée expérimentalement par diffraction des rayons X (voir paragraphe II.3.c.). Le polycristal est construit à partir d'une partition de Voronoï générée par le programme Neper [11], il s'agit d'une distribution aléatoire en volume. Les centres des cellules du Voronoï sont aléatoirement distribués dans un volume donné, les cellules étant définies de telle façon que leurs faces soit les plans équidistants des centres voisins. Le polycristal considéré est constitué de 100 grains et maillé avec 16432 éléments.

Les constantes élastiques ont été extraites de la littérature pour une microstructure bainitique [12].

L'identification des paramètres d'érouissage  $n$ ,  $h_0$ ,  $\tau_0$  et  $\tau_s$  a été effectuée par méthode inverse dont le principe est illustré par la Figure V.4.1. Elle consiste à calculer la réponse globale de l'agrégat soumis à un déplacement en traction sur la face horizontale supérieure et à la comparer à la courbe d'érouissage expérimentale obtenue au cours des essais de traction. Des conditions aux limites périodiques sont appliquées sur les faces verticales opposées telles que le déplacement vertical ( $U_z(t)$ ) de chaque face est asservi au déplacement vertical de la face opposée, ceci assure que les faces de l'agrégat restent parallèles entre elles au cours de la simulation. Ainsi la relation de déplacement selon  $U_z$  pour chaque point  $(x_1, y_1, z_1)$  d'une face  $f'_1$  et en fonction du déplacement du point opposé  $(x_2, y_2, z_2)$  de la face  $f''_2$  s'exprime par :

$$U_z(x_1, y_1, z_1) = U_z(x_2, y_2, z_2), \quad (\text{V.4.4})$$

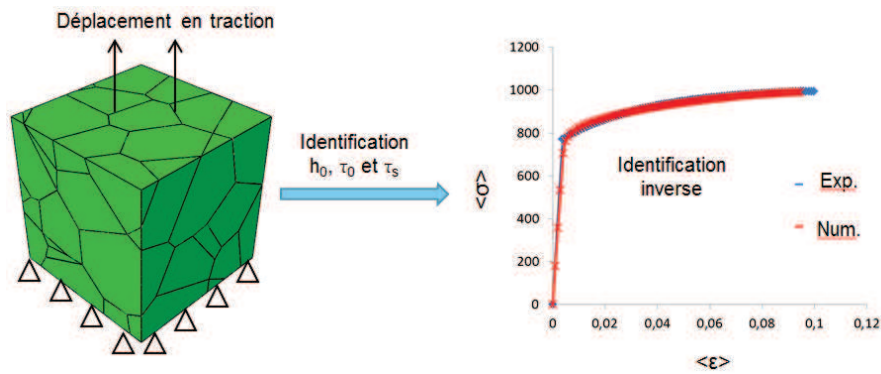
Le paramètre  $n$  a d'abord été optimisé pour une réponse insensible à la vitesse de déformation dans la gamme de  $10^{-4}$  à  $10^{-6} \text{ s}^{-1}$  (d'après les simulations la vitesse de déformation équivalente dans l'essai de disque à la vitesse  $v_p$  a été estimée à  $10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ). Ensuite les paramètres  $h_0$ ,  $\tau_0$  et  $\tau_s$  ont été identifiés par essai-erreur. A titre d'illustration, la Figure V.4.2 présente la sensibilité de l'identification au paramètre  $h_0$ .

L'ensemble des paramètres utilisés pour le comportement cristallin est donné au Tableau V.4.1.

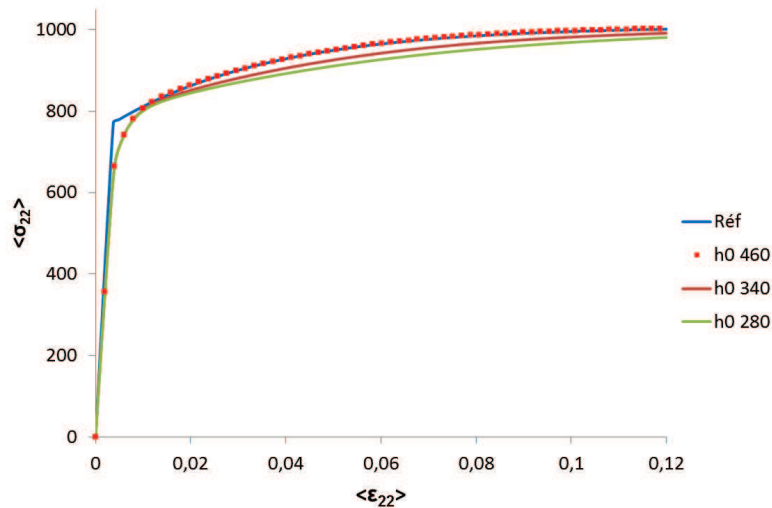
**Tableau V.4.1.** Paramètres mécaniques du comportement polycristallin.

$\dot{\epsilon}$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$n$	$C_{11}$ (GPa)	$C_{12}$ (GPa)	$C_{44}$ (GPa)	$h_0$	$\tau_0$	$\tau_s$	$q$
0,001	110	220 [12]	78 [12]	70 [12]	460	310	380	1,1 [10]

Le comportement cristallin utilise l'implémentation d'une UMAT développée par Huang [10] et modifiée par Nguyen [2]. Les orientations cristallographiques sont assignées à chaque grain par l'utilisation d'une routine utilisateur ORIENT, considérant une distribution d'angles d'Euler  $(\varphi_1, \phi, \varphi_2)$  isotrope.



**Figure V.4.1.** Schéma de principe de l'identification inverse, la distribution des orientations cristallines est considérée isotrope. .



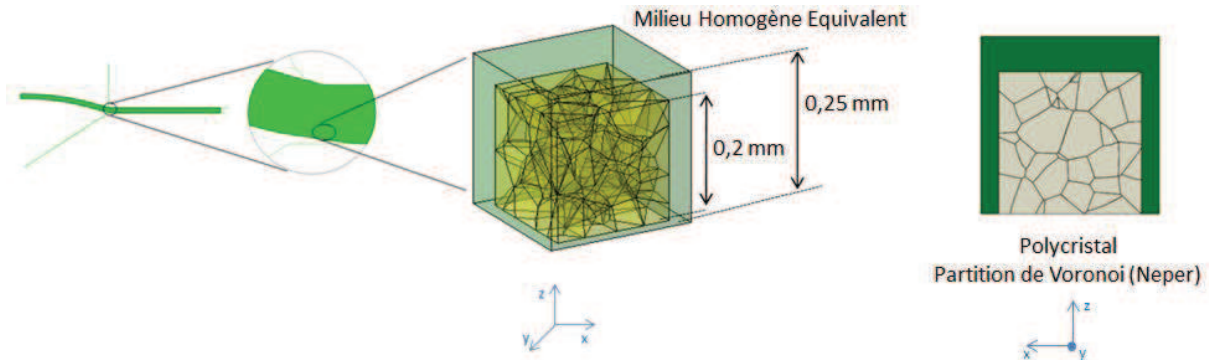
**Figure V.4.2.** Comparaison des courbes expérimentales et numériques pour l'identification des paramètres d'écroutissage : cas du paramètre  $h_0$ .

Les paramètres hydrogène utilisés sont les mêmes que dans le cas du calcul 2D isotrope global (voir paragraphe V.2.d.). Dans l'approche utilisée, et compte-tenu de l'absence de résultats disponibles dans la littérature, le coefficient de diffusion de l'hydrogène est supposé indépendant de l'orientation des grains.

#### V.4.b. Mise en place du submodelling

L'évolution au cours du temps des champs de déplacement et de concentration en hydrogène diffusif du calcul 2D global sont utilisées en tant que conditions aux limites pour la modélisation d'un agrégat polycristallin 3D situé dans la zone de rupture potentielle du disque (Figure V.4.3). L'agrégat polycristallin est constitué d'un cube de côté  $20 \mu\text{m}$ , sa face inférieure, confondue avec la face interne du disque, est en contact direct avec l'hydrogène, et les autres faces sont entourées par un milieu homogène équivalent cubique de côté  $25 \mu\text{m}$ . Le MHE, de comportement identique

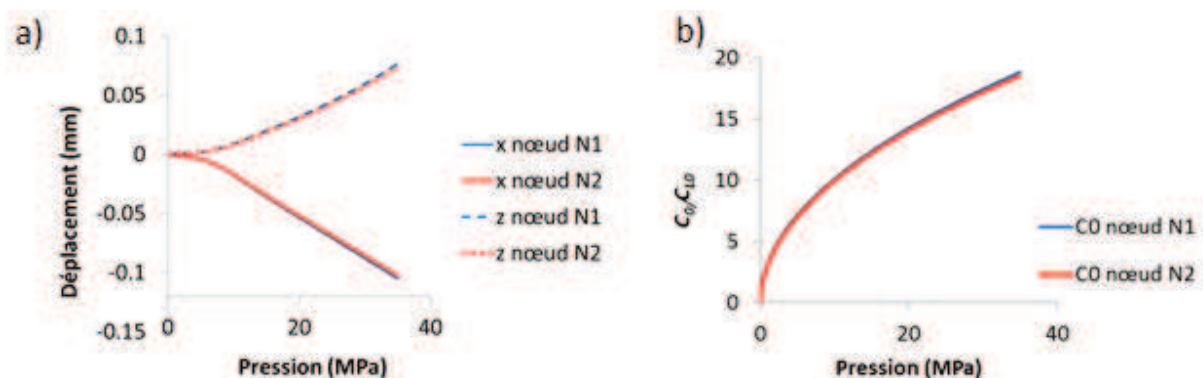
à celui du calcul 2D (voir paragraphe IV.1.b) est utilisé pour transférer les conditions aux limites afin d'éviter des artefacts liés au nombre de degrés de libertés contraints sur le bord du polycristal. De plus, afin d'éviter une diffusion d'hydrogène parasite entre l'agrégat cristallin et le MHE, le coefficient de diffusion du MHE est fixé à zéro. Ceci implique que l'hydrogène ne peut ni diffuser dans le MHE et ni s'accumuler sur les parois de l'agrégat.



**Figure V.4.3.** Localisation de l'agrégat polycristallin dans la simulation d'essai de disque.

Compte-tenu des tailles respectives du maillage du calcul 2D axisymétrique et du polycristal, le transfert du déplacement a concerné un seul élément du calcul 2D, soit 8 ddl de déplacement selon les axes  $x$  et  $z$  du polycristal. Ces composantes de déplacement sont extrapolées aux nœuds des bords du MHE à l'aide des fonctions d'interpolation des éléments utilisés, et transférés en 3D par extrusion axisymétrique. Le volume ainsi formé est assimilé à un parallélépipède, ce qui est justifié par sa taille. Cette procédure de transfert a été réalisée à l'aide d'un script python.

La concentration en hydrogène diffusif (voir Figure V.4.4) est transférée sur les faces supérieure et inférieure du polycristal contenu dans le MHE. Le transfert est réalisé en récupérant l'évolution de la concentration en hydrogène diffusif sur un nœud (N1) de la face inférieure et un nœud (N2) de la face supérieure (Figure V.4.3). La Figure V.4.5 illustre l'application des conditions aux limites au domaine cubique et à l'agrégat polycristallin. Les valeurs des variables transférées entre les deux faces sont très proches, à cause de leur faible distance.



**Figure V.4.4.** Variables des nœuds N1 et N2 transférées dans le submodelling : a) déplacement et b) concentration normalisée d'hydrogène.

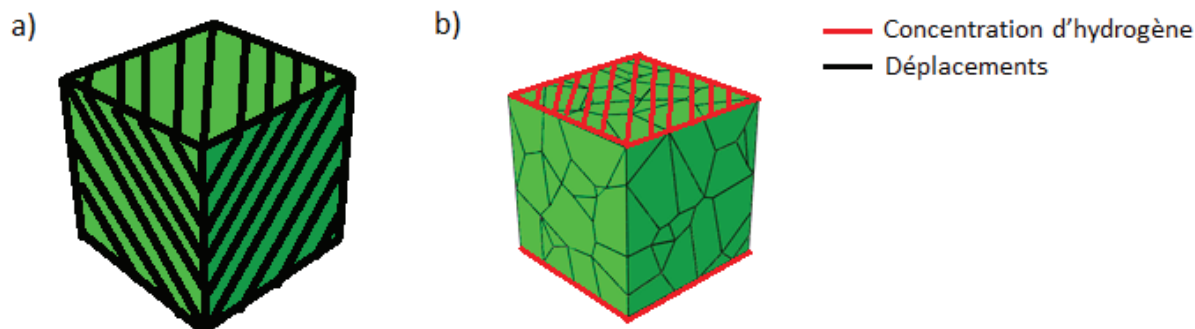


Figure V.4.5. Application des conditions aux limites sur : a) le MHE et b) l'agrégat polycristallin.

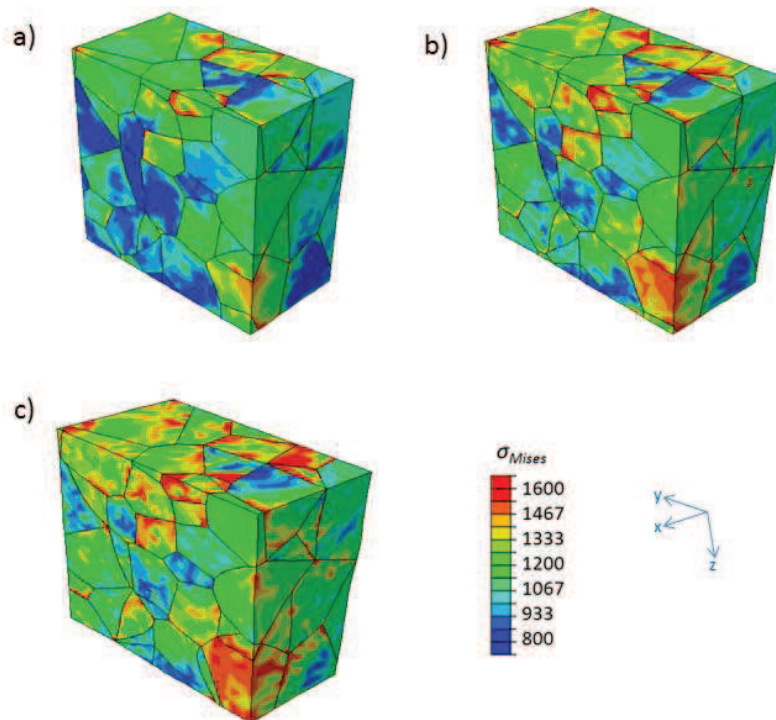
Le maillage est réalisé avec des éléments finis éléments tétraédriques à 10 nœuds, 4 points d'intégration et un degré de liberté thermique, notés C3D10MT dans Abaqus. L'agrégat cristallin est constitué de 19841 éléments et les calculs durent en moyenne 20h.

#### V.4.c. Distribution des champs mécaniques dans l'agrégat polycristallin

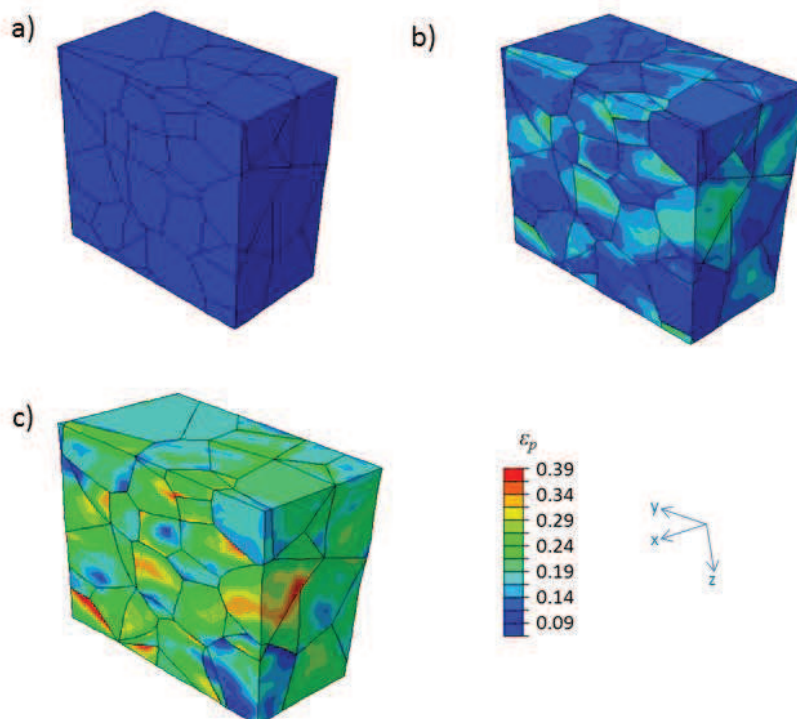
La Figure V.4.6 présente l'évolution de la contrainte équivalente de von Mises dans l'agrégat polycristallin au cours d'un essai de disque. On remarque l'hétérogénéité des valeurs de contrainte qui varient d'un facteur 2 dans l'agrégat. Par ailleurs, la répartition des contraintes évolue peu entre les pressions de 25 et 35 MPa, ce qui est cohérent avec la saturation de l'écrouissage.

La représentation de la déformation plastique équivalente (Figure V.4.7) montre que les niveaux de déformation sont faibles jusqu'à la pression de 25 MPa, ordre de grandeur de pression à partir duquel la plasticité apparaît dans le disque (voir paragraphe IV.2.a.).

L'hétérogénéité de déformation se corrèle bien avec celle des contraintes, les grains les plus (respectivement moins) déformés étant ceux où les contraintes sont plutôt faibles (respectivement fortes), soulignant l'effet d'anisotropie dû aux différences d'orientation cristalline. On observe qu'entre 25 et 35 MPa les niveaux de déformation plastique équivalente augmentent, ce qui correspond expérimentalement à l'augmentation régulière de la flèche avec la pression (voir paragraphe IV.2.c.).



**Figure V.4.6.** Distribution de la contrainte équivalente de von Mises dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.

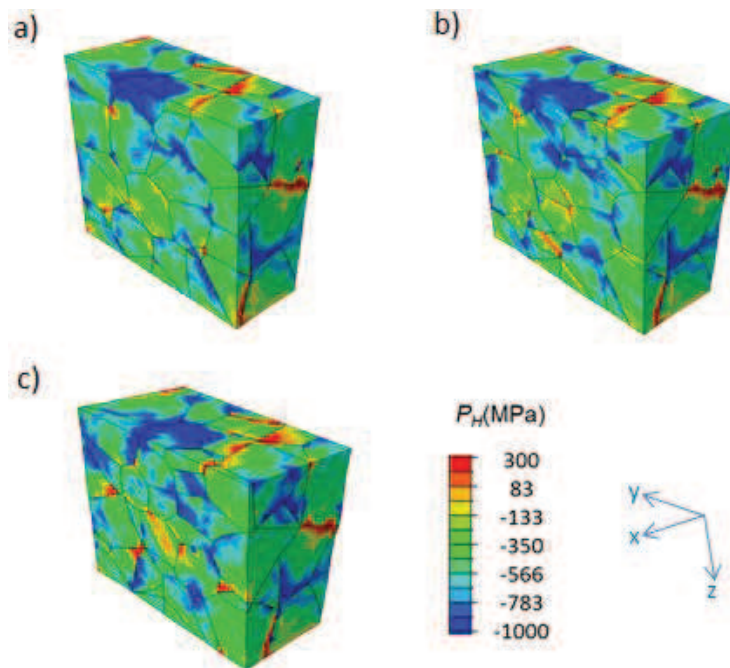


**Figure V.4.7.** Distribution de la déformation plastique équivalente dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.

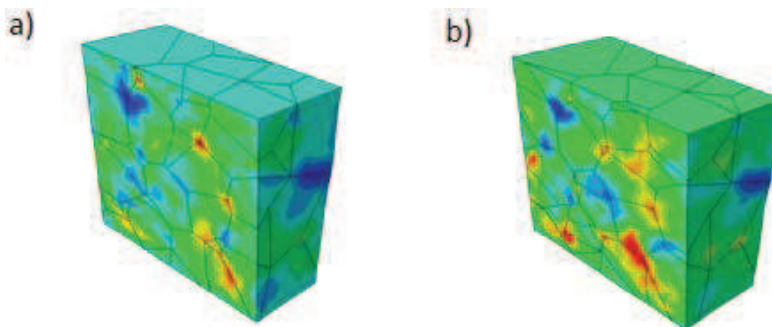


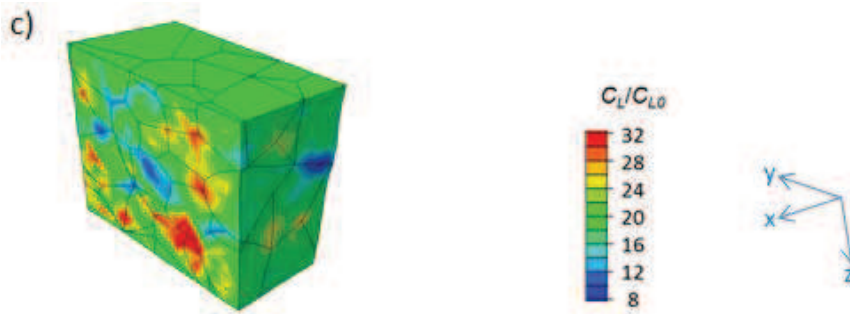
#### V.4.d. Distribution d'hydrogène dans l'agrégat polycristallin

La Figure V.4.8 et la Figure V.4.9 présentent respectivement la distribution de pression hydrostatique et d'hydrogène diffusif dans l'agrégat au cours du calcul. La comparaison de ces figures montre que les régions de forte concentration d'hydrogène diffusif se corrélient assez bien avec les zones de forte variation de pression, conformément à la dépendance du flux au gradient de pression tel qu'introduit dans la modélisation. Ainsi, les résultats obtenus sont en accord avec les résultats obtenus dans la simulation 2D global, le calcul montrant l'influence des champs mécaniques sur la diffusion de l'hydrogène.



**Figure V.4.8.** Distribution de la pression hydrostatique dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.



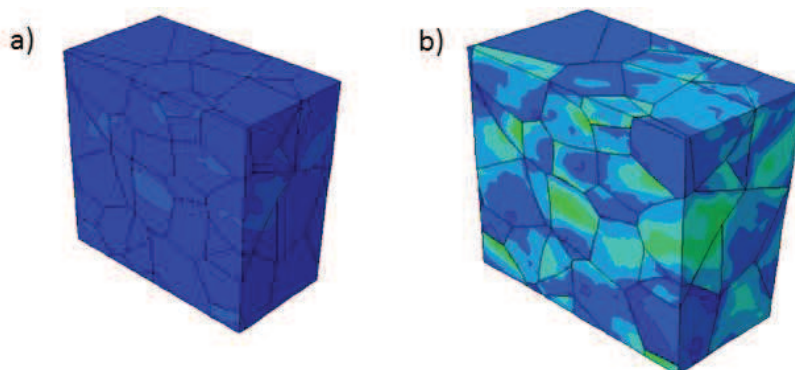


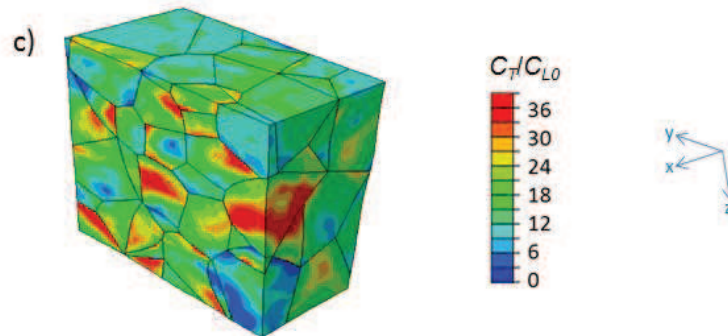
**Figure V.4.9.** Distribution de la concentration normalisée en hydrogène diffusif dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.

La distribution d'hydrogène piégé dans l'agrégat polycristallin est présentée à la Figure V.4.10. Le couplage hydrogène plasticité est mis en évidence par la correspondance des cartographies iso-valeurs d'hydrogène piégé avec les cartographies iso-valeurs de déformation plastique équivalente (Figure V.4.7).

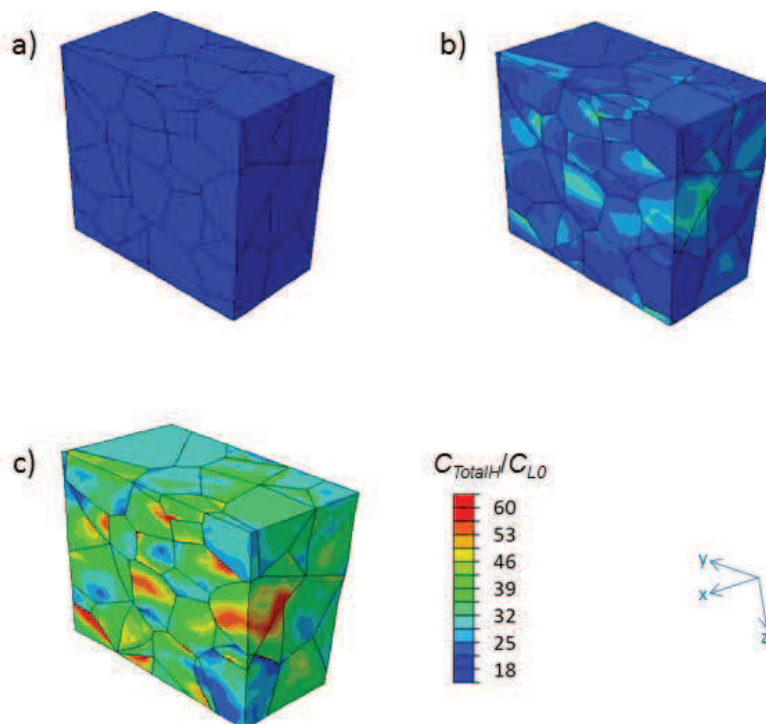
D'ailleurs l'évolution des niveaux d'hydrogène piégé montre des similitudes avec l'évolution de la déformation plastique avec des concentrations d'hydrogène piégé faibles à 25 MPa (proche de 0), cohérent avec les faibles niveaux de déformation alors qu'à 35 MPa les concentrations d'hydrogène piégé sont, comme les niveaux de déformation, beaucoup plus importantes.

La Figure V.4.11 représente la distribution d'hydrogène total dans l'agrégat, la prééminence de l'hydrogène piégé est soulignée par les similitudes entre la répartition d'hydrogène total, la répartition d'hydrogène piégé et la répartition de déformation plastique équivalente. Cet effet est dû à la relation de couplage utilisé et les résultats sont cohérents avec les résultats obtenus dans le cas du calcul homogène 2D global.





**Figure V.4.10.** Distribution de la concentration normalisée en hydrogène piégé dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.



**Figure V.4.11.** Distribution de la concentration normalisée en hydrogène total dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa.

#### V.4.e. Définition d'un indice de fragilisation local

A partir de la modélisation polycristalline, on dispose donc de champs de contraintes et de concentration d'hydrogène hétérogènes liés à l'anisotropie de comportement plastique, qui permet d'envisager des critères d'initiation de la fragilisation locale. En s'inspirant des critères utilisés dans l'approche par zones cohésives (voir paragraphe V.1), postulant une diminution linéaire de la contrainte critique d'initiation de rupture avec la concentration locale d'hydrogène :

$$\sigma_{rupt} = \sigma_{max}^0 - \Delta_G C_{TotalH}. \quad (V4.4)$$

On peut considérer que l'initiation de la fragilisation se produira là où la contrainte principale maximale  $\sigma_{max}$  atteint en premier la valeur  $\sigma_{rupt}$ . On définit donc un indice de fragilisation local par :

$$i_{rupt} = \frac{\sigma_{max}}{\sigma_{rupt}}, \quad (V.4.5)$$

qui prend la valeur 1 quand le critère est atteint.

L'application de cette approche pour le polycristal soumis à l'essai de disque a été testée avec les valeurs  $\sigma_{max}^0 = 1200$  MPa [1] et  $\Delta_G = 34,25$ .

L'ensemble du post-traitement est effectué à l'aide d'un script Python développé au LSPM au cours des travaux de thèse et basé sur des travaux antérieurs de Charles. Le calcul de l'indice est réalisé en chaque point de Gauss de l'agrégat à tous les instants de calculs de la simulation et suit la procédure suivante :

- enregistrement de la contrainte maximale principale, du volume des points de Gauss et de la concentration totale en hydrogène ;
- calcul de  $i_{rupt}$  ;
- traçage des histogrammes de densité de probabilité de l'indice  $i_{rupt}$  en pondérant les valeurs d'indice par les volumes des points de Gauss ;
- calcul de l'aire sous la courbe pour  $i_{rupt} \geq 1$  pour chaque histogramme ;
- traçage de l'évolution de la probabilité de risque de rupture en fonction de la pression.

La Figure V.4.12 présente deux histogrammes de densité de probabilité de l'indice  $i_{rupt}$  calculés aux pressions de 25 et 35 MPa. On remarque que l'augmentation de la pression tend à décaler l'histogramme vers les hautes valeurs d'indice.

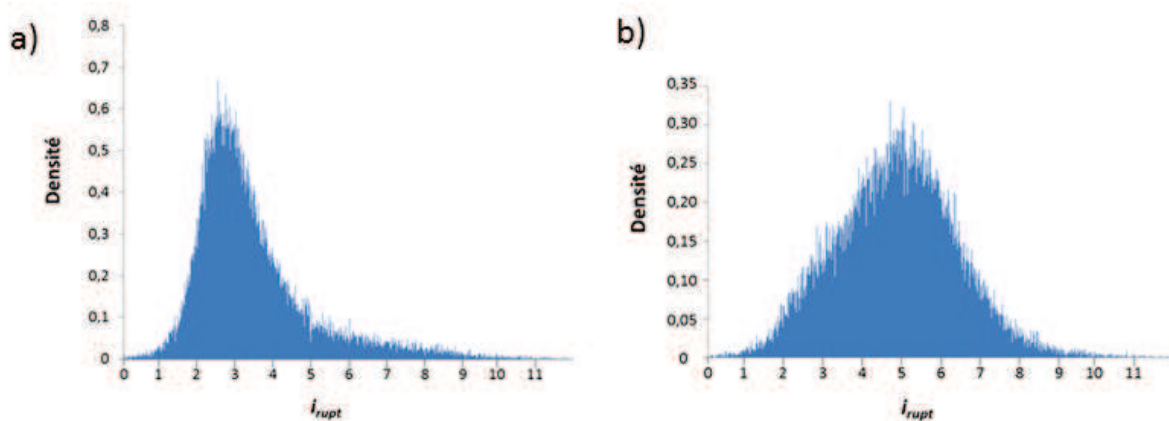


Figure V.4.12. Histogrammes de la densité de probabilité de l'indice de rupture  $i_{rupt}$  à : a) 25 MPa et b) 35 MPa.

A partir des simulations réalisées pour les épaisseurs de disque 0,75 mm et 1,50 mm, la comparaison de l'évolution de la probabilité de fragilisation en fonction de la pression a pu être effectuée. Les courbes obtenues sont données à la Figure V.4.13 et montrent que la saturation intervient dès 25 MPa pour la simulation du disque d'épaisseur 0,75 mm et dès 30 MPa pour l'épaisseur 1,50 mm. Les résultats obtenus sont satisfaisants pour l'épaisseur 0,75 mm, la plus faible pression de rupture expérimentale observée étant de 27 MPa. En revanche les résultats sont trop sévères pour l'épaisseur 1,50 mm ce qui peut être causé par l'utilisation du paramètre  $\sigma_{max}^0$  issu des calculs avec zones cohésives, qui présentaient déjà un résultat trop sévère avec l'épaisseur 1,50 mm (voir paragraphe V.1.b.).

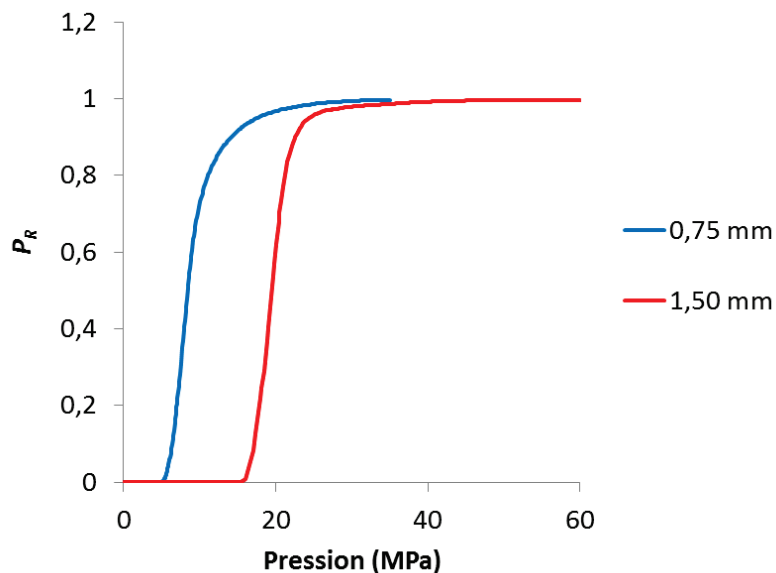


Figure V.4.13. Probabilité de rupture en fonction de la pression.

## **V.5. Conclusions**

La prise en compte de l'hydrogène dans la rupture a été réalisé en utilisant un modèle phénoménologique avec zones cohésives (ZC) ayant permis d'obtenir une description cohérente des pressions de rupture sous H<sub>2</sub> au cours d'un essai de disque, ce qui est relativement satisfaisant avec un nombre limité de paramètres. Ce type de modèle présente cependant d'importantes limitations quant à sa manipulation pratique et ses capacités prédictives, et en l'état actuel ne prenait pas en compte le couplage de la diffusion d'hydrogène avec le champ de contraintes et la plasticité.

En conséquence, les outils numériques disponibles pour la simulation du transport de l'hydrogène avec couplage mécanique-diffusion-piégeage ont été adaptés et appliqués au cas de l'essai de disque, à l'échelle globale dans le cadre de l'élastoplasticité isotrope, et à l'échelle d'un agrégat polycristallin virtuel dans le cadre de l'élasto(visco)plasticité cristalline. Les paramètres d'écrouissage du monocristal ont été identifiés par approche inverse sur la réponse d'un agrégat polycristallin à l'aide des courbes de traction expérimentales sur polycristal, tandis que les paramètres relatifs à l'hydrogène proviennent essentiellement de la littérature sur le fer, dénotant un manque de données expérimentales sur le piégeage de l'hydrogène pour le matériau de l'étude.

Le calcul 2D axisymétrique global a permis de mettre en évidence l'évolution de la répartition de l'hydrogène diffusif et de l'hydrogène piégé au cours de l'essai de disque, en cohérence avec celle des champs mécaniques. Dans la zone d'intérêt pour le risque de rupture, la part d'hydrogène piégé est prédominante, induisant dans cette zone soumise à de fortes déformations plastiques des valeurs maximales de concentration d'hydrogène total. Un « submodelling » a ensuite été effectué dans cette zone, en définissant un agrégat polycristallin 3D virtuel, afin d'accéder à l'hétérogénéité des champs mécaniques et de concentration d'hydrogène à l'échelle de la microstructure au cours de l'essai de disque. Une piste de définition d'un indice de fragilisation local et l'approche statistique du risque de ruine a été esquissée.

Le succès de l'adaptation des outils numériques développés au LSPM par Nguyen [2] à la géométrie et aux conditions de chargement de l'essai de disque a démontré la robustesse et la flexibilité de ces outils. L'approche multi-échelle ainsi opérée consiste une base encourageante pour la suite des travaux et pourrait être facilement étendue à d'autres essais (par exemple bouteille sous pression,..).

## **Bibliographie**

[1] Y. Charles *et al.* *Numerical modeling of the Disk Pressure Test up to failure under gaseous hydrogen*. Journal of Materials Processing Technology, 2012. **212**: p.1761-1770.

[2] T.H. Nguyen. *Développement d'outils numériques pour la prise en compte du couplage hydrogène-plasticité dans un code éléments finis ; applications à l'essai de pliage en U*. Thèse de doctorat. Université Paris 13, 2014.

[3] Abaqus, User Subroutine Reference Manual, paragraph 1.1.19 (2008).



- [4] C.S. Oh, Y.J. Kim, K.B. Yoon. *Coupled analysis of hydrogen transport using Abaqus*, Journal of solid mechanics and Materials engineering, 2010. **4**: p. 908-917.
- [5] P.F. Liu and J.Y. Zheng. *Finite element analysis of tensile behavior of ductile steel with defects*. Journal of Failure Analysis and Prevention, 2010. **10**: p.212-217.
- [6] M. Wang *et al.* *Determination of the critical hydrogen concentration for delayed fracture of high strength steel by constant load test and numerical calculation*. Corrosion Science, 2006. **48**: p.2189-2202.
- [7] R.A. Oriani. *The diffusion and trapping of hydrogen in steel*. Acta Metallurgica, 1970. **18**: p.147-157.
- [8] A.H.M. Krom, R.W.J. Koers and A. Bakker. *Hydrogen transport near a blunting crack tip*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1999. **47**: p.971–992.
- [9] P. Sofronis and R.M. McMeeking. *Numerical analysis of hydrogen transport near a blunting crack tip*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1989. **37**(3): p.317-350.
- [10] Y. Huang. *A user-material subroutine incorporating single crystal plasticity in the ABAQUS Finite Element Program*. Mech. Report 178. Division of Applied Sciences, Harvard University, Cambridge, MA, 1991.
- [11] R. Quey., P.R. Dawson, and F. Barbe. *Large-scale 3D random polycrystals for the finite element method: Generation, meshing and remeshing*. Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 2011. **200**: p. 1729-1745.
- [12] N. Osipov, *et al.* *FE modeling of bainitic steels using crystal plasticity*. Philosophical Magazine, 2008. **88**: p.3757-3777.



## Conclusion et perspectives

Ce travail a été consacré à l'analyse expérimentale et la simulation numérique de l'essai de disque à rupture sous pression de gaz, essai normalisé de sélection des matériaux métalliques sensibles à l'hydrogène. L'intérêt industriel était d'évaluer la potentielle extension du domaine de qualification de l'essai à des domaines de pressions plus importants (typiquement 50-100 MPa, contre 30 MPa [1] actuellement). Pour cela des essais de disques sur site industriel ont été effectués, complétés par des investigations mécaniques et microstructurales en laboratoire, et un effort important de simulation numérique par éléments finis de l'essai a été développé. L'étude a porté sur une bouteille utilisée pour le stockage de l'hydrogène gazeux à 20 MPa, constituée d'acier AISI 4135, acier faiblement allié au Cr-Mo.

L'analyse expérimentale a conduit à l'amélioration de la compréhension de l'essai de disque à travers une analyse critique du protocole de réalisation de l'essai et de la dispersion des résultats obtenus.

En premier lieu, la caractérisation du matériau de l'étude a mis en évidence la variabilité de ses propriétés mécaniques, attribuée essentiellement aux inhomogénéités de traitements thermomécaniques lors de la fabrication de la bouteille, soulignant de ce fait l'importance du repérage et de la traçabilité des échantillons prélevés. Sur le dispositif d'essai lui-même, l'importance du contrôle de différents paramètres tels que la vitesse de pressurisation, la géométrie de la bride supérieure ainsi que de l'état de surface des disques a été soulignée.

Grâce à l'acquisition de courbes flèche-pression en cours d'essai, la comparaison du comportement des disques sous He et sous H<sub>2</sub> a pu être effectuée et a montré la similarité du comportement global des disques pour les deux gaz dans le domaine commun de pression accessible avant rupture.

L'utilisation de disques d'épaisseurs supérieures à celle de la norme de l'essai a permis d'obtenir des pressions de rupture élevées (valeur maximale de 54 MPa sous H<sub>2</sub>) et le calcul de l'indice de fragilisation moyen a montré que les résultats sont globalement inférieurs à 2, seuil critique de sélection. Cependant la dispersion des résultats tend à augmenter quand l'épaisseur augmente, ce qui peut résulter d'une sensibilité accrue aux différentes causes de dispersion expérimentale, ou des limites intrinsèques du dispositif, question qui n'a pu être tranchée dans le cadre de la présente étude. Globalement, la méthodologie d'essai montre sa pertinence jusqu'à des pressions de 50 MPa mais l'augmentation seule de l'épaisseur du disque n'est pas suffisante pour valider l'essai à des pressions supérieures.

L'examen de la fissuration a été effectué à différentes échelles, de l'aspect visuel aux observations en microscopie électronique à balayage, en surface et en coupes radiales de disques rompus ou non. Un réseau superficiel de microfissures se développe au cours de l'essai dans la zone d'intérêt pour le risque de rupture, sensible à l'état de surface, mais dont la nocivité vis-à-vis de la rupture fatale n'est pas évidente. L'observation de faciès a montré clairement le caractère ductile de la rupture sous hélium et son amorce fragile sous hydrogène. Sur les coupes radiales, les ramifications des fissures sous hydrogène s'appuient essentiellement sur les carbures de la microstructure bainitique et sur les joints de grains, tandis que l'endommagement ductile associé à de fortes déformations plastiques est visible sous hélium. Par ailleurs, les investigations

menées sur des disques rompus à différentes pressions sous H<sub>2</sub> (30 et 50 MPa) ont montré que les aspects de la fissuration restent similaires à pression de rupture plus élevée.

L'analyse numérique a montré la mise en œuvre réussie de la simulation par éléments finis de l'essai de disque, constituant un cas de chargement à contrainte imposée, appréhendée successivement en 2D axisymétrique, avec ou sans zones cohésives, en 3D avec endommagement ductile, ainsi qu'à l'échelle du polycristal. Les stratégies numériques utilisées ont permis d'accéder simultanément aux champs mécaniques et de concentration d'hydrogène dans le matériau au cours de l'essai de disque. L'approche développée pour le couplage mécanique-hydrogène est basée sur la partition de l'hydrogène en deux populations (diffusive et piégée) en équilibre thermodynamique et sur l'équation de transport prenant en compte l'effet du gradient de pression hydrostatique et de l'évolution phénoménologique du piégeage avec la déformation plastique équivalente cumulée. Des outils numériques utiles à différentes analyses de sensibilité (différents jeux de paramètres mécaniques et/ou hydrogène, variation de la géométrie d'essai,...) ont ainsi été mis en place et testés.

Un bon accord a été obtenu entre les résultats de simulations effectuées avec des hypothèses simplificatrices impliquant un nombre limité de paramètres à identifier (comportement élastoplastique isotrope, outils rigides, contact sans frottement) et les résultats expérimentaux disponibles (courbes flèche-pression, surfométrie du disque déformé) pour l'épaisseur des disques de la norme, ainsi que pour les épaisseurs plus élevées à condition de tenir compte précisément de la géométrie des outils réels.

Les calculs montrent que l'augmentation de l'épaisseur modifie sensiblement les champs mécaniques au voisinage du pôle du disque déformé, et conduit à une augmentation des niveaux de déformation dans la zone d'intérêt. L'influence des paramètres d'érouissage sur la distribution des champs mécaniques a également été soulignée, notamment vis-à-vis de l'acuité de la localisation de la déformation plastique dans la zone d'intérêt. Les simulations ont permis également de quantifier l'influence de la géométrie de la cellule d'essai sur la réponse du disque, ainsi l'augmentation du rayon de courbure de la bride supérieure conduit à une augmentation de la flèche et à une localisation de la déformation moins accusée dans la zone d'intérêt.

De plus, les simulations réalisées ont permis d'explorer des pistes pour la prévision de la rupture. Des simulations 3D avec endommagement volumique de type Gurson ont ainsi permis d'obtenir des valeurs de pressions de rupture sous He compatibles avec l'expérience, et de prévoir celles pour des épaisseurs virtuelles plus élevées. Pour rendre compte de la fragilisation par l'hydrogène, un modèle avec zones cohésives a permis d'obtenir des résultats cohérents de pression de rupture sous hydrogène, cependant le caractère prédictif d'un tel modèle est limité, la formulation des zones cohésives nécessitant un ajustement partiel sur les résultats attendus.

La prise en compte du couplage hydrogène-plasticité à l'échelle macroscopique sur le disque global, et à l'échelle du polycristal dans un agrégat de 100 grains, a montré la robustesse et la performance des procédures issues des travaux de Nguyen [2]. Ainsi, les distributions d'hydrogène diffusif et d'hydrogène piégé ont pu être calculées au cours de l'essai de disque, et corrélés aux évolutions des champs mécaniques. Les calculs sur un maillage de polycristal virtuel issu du « submodeling » d'un élément du calcul global dans la zone d'intérêt montrent l'importance des hétérogénéités locales induites par la prise en compte de l'anisotropie d'origine

cristalline. Les résultats obtenus ont permis d'établir des pistes de réflexion pour la définition d'un indice de fragilisation local. Cependant l'ensemble des travaux réalisées nécessiterait d'avoir accès à des données expérimentales précises pour le matériau de l'étude afin d'améliorer la fiabilité de la prise en compte de l'hydrogène dans les calculs.

Les perspectives envisagées à l'issue des travaux de thèse portent sur trois aspects principaux : (i) le protocole expérimental d'essai de disque, (ii) les mécanismes de fragilisation par l'hydrogène et (iii) la simulation numérique.

Le protocole expérimental d'essai de disque pourrait être amélioré en étudiant la précision du serrage et son influence sur la réponse du disque notamment dans le cas des fortes épaisseurs de disque. Les travaux de thèse ayant mis en évidence un émoussement de la cellule d'essai, il est impérieux de contrôler périodiquement ce paramètre et de définir un écart critique au rayon de courbure théorique à ne pas dépasser pour garantir de la reproductibilité des essais. D'autre part, une modification de la géométrie du disque afin de localiser la fragilisation dans une zone du disque plus accessible pour la réalisation de mesures de déformation locales permettrait d'affiner la compréhension des mécanismes à l'œuvre au cours d'un essai de disque.

L'analyse des mécanismes de fragilisation par hydrogène sous hautes pressions nécessiteraient des investigations supplémentaires avec par exemple la réalisation d'essai de disque pour différentes épaisseurs en utilisant un matériau issu d'un procédé d'élaboration relativement homogène (type plaque laminée) qui permettrait d'étudier l'influence de l'épaisseur de disque sur la réponse d'essai en s'affranchissant d'éventuelles hétérogénéités microstructurales résultant de procédés d'élaboration plus complexes (ex : bouteilles). Il serait également intéressant de réaliser des essais de disque avec « contre-pression » afin de compenser la pression appliquée et isoler ainsi la seule l'influence de l'hydrogène sur le matériau.

L'amélioration et la fiabilisation de la prévision des simulations numériques passerait par une meilleure connaissance des données expérimentales pour l'acier AISI 4135, avec notamment l'identification du comportement mécanique à l'aide d'essais de traction sous hydrogène gazeux, ainsi que des investigations sur la nature des pièges de l'hydrogène dans le matériau et sur les énergies de piégeage associées (MET, désorption,...). La modélisation à l'échelle du polycristal nécessiterait par ailleurs une description morphologique plus réaliste de la microstructure bainitique, avec prise en compte des lattes et des carbures.

Les outils numériques pourraient s'appliquer à d'autres géométries (bouteilles ou tubes sous pression, ...) et accroître ainsi le domaine d'analyse du couplage entre champs mécaniques et hydrogène, à condition de disposer des données expérimentales pertinentes pour alimenter, valider et/ou améliorer les modèles.

[1] ISO 11114-4, 2005. *Transportable gas cylinders – compatibility of cylinder and valve materials with gas contents – Part 4: Test methods for selecting metallic materials resistant to hydrogen embrittlement.*

[2] T.H. Nguyen. *Développement d'outils numériques pour la prise en compte du couplage hydrogène-plasticité dans un code éléments finis ; applications à l'essai de pliage en U.* Thèse de doctorat. Université Paris 13, 2014.





# Table des illustrations

## 1. Figures

Figure I.1. Rupture suite à une fragilisation par l'hydrogène d'une canalisation dans un oléoduc (a) ; (b) est un agrandissement de la zone numérotée 1 dans (a) [4].	17
Figure I.1.1. Principe énergétique de piégeage de l'hydrogène avec $H_r$ site de réseau et $H_p$ site de piégeage [2].	23
Figure I.1.2. Autoradiographie au tritium montrant le piégeage préférentiel de l'hydrogène sur l'inclusion de MnS après chargement en hydrogène par voie cathodique [7].	24
Figure I.1.3. Distribution de tritium en tête de fissure sur des monocristaux déformés d'un superalliage à base nickel [8].	25
Figure I.1.4. Mise en évidence de la présence d'hydrogène (repéré par les liserés blancs) aux joints de grains et dans la phase perlitique par la technique de « microprint » [12].	25
Figure I.1.5. Mesure du flux de perméation de l'hydrogène dans un acier bainitique 2,25Cr-1Mo au cours de la déformation [13].	26
Figure I.1.6. Mesures de dureté en fonction de la charge appliquée dans un acier austénitique 21Cr-6Ni-9Mn montrant que la présence d'hydrogène entraîne une augmentation de 30% de la dureté à charge équivalente [14].	27
Figure I.1.7. Empilement de dislocation : a) à la fin du chargement ; b) évolution de l'empilement en présence d'hydrogène et c) superposition des images a) et b) [15].	27
Figure I.1.8. Surface d'éprouvettes de traction après essai jusqu'à rupture : a) essai sans hydrogène et b) essai avec pré-chargement en hydrogène [16].	28
Figure I.1.9. Fractographies MEB après essais de flexion 4 points : a) rupture ductile avec coalescence de cavités dans l'échantillon non chargé ; b) rupture par quasi-clivage dans l'échantillon chargé en hydrogène [17].	28
Figure I.1.10. Schéma des différentes localisations de l'hydrogène dans le matériau et de leurs conséquences sur le mode de rupture [18].	29
Figure I.1.11. Schématisation du modèle HID. $E_{\text{cohésion}}$ correspond à l'énergie de cohésion du matériau sans hydrogène et $E_{\text{cohésion}}^H$ à l'énergie de cohésion du matériau sous hydrogène [3].	30
Figure I.1.12. Schématisation du modèle HELP : a) déformation sans hydrogène ; b) déformation avec hydrogène [3].	30
Figure I.1.13. Schématisation du modèle AIDE : a) rupture par déformation plastique ; b) rupture assistée par hydrogène [3].	31
Figure I.1.14. Schématisation du modèle HESIVE : a) rupture sans hydrogène ; b) rupture avec hydrogène [3].	31
Figure I.2.1. Représentation schématique du principe de chargement en hydrogène par voie cathodique [28].	32
Figure I.2.2. Installations expérimentales pour la réalisation d'essais de traction en autoclave sous environnement hydrogène gazeux [3].	33
Figure I.2.3. Evolution du ratio de la concentration d'hydrogène $C$ dans le matériau sur la concentration d'hydrogène maximale $C_0$ pouvant être introduite lors : a) d'un chargement gazeux et b) cathodique en fonction de la profondeur, désignée par $x$ [3].	33
Figure I.2.4. Résultats d'essais de traction en autoclave pour un acier X80 [36].	34

Figure I.2.5. Aspect d'un faciès de rupture d'un acier XC90 : a) rupture ductile avec présence de cupules sous air ; b) rupture intergranulaire sous hydrogène [34].	34
Figure I.2.6. Illustration du pliage en U [38].	35
Figure I.2.7. Appareillage de test pour les méthodes B et C de la norme ISO 11114 [29].	35
Figure I.2.8. Schéma de l'essai de disque [29].	36
Figure I.2.9. Pression de rupture de un acier 21-6-9 dans différents gaz [43].	38
Figure I.2.10. Influence de l'état de surface et du traitement thermique sur la pression de rupture au cours d'un essai de disque sous H <sub>2</sub> pour différents traitements thermiques [45].	39
Figure I.2.11. Schéma de localisation de la rupture et observations de la surface de rupture : (1) amorce de type fragile avec quasi-clivage et (2) propagation ductile [46].	39
Figure I.2.12. Diagramme TRC (Transformation en Refroidissement Continu) de l'acier 35CD4 à 0% et 30 % de déformation [48].	40
Figure I.2.13. Etapes d'emboutissage pour former le fût de la bouteille [49].	41
Figure I.2.14. Opération de fluotournage pour modeler le goulot de la bouteille [49].	41
Figure I.2.15. Aspect d'un faciès de rupture pour un acier AISI 4135 trempé revenu après essai de traction en milieu inerte [50].	42
Figure I.2.16. Aspect d'un faciès de rupture d'un acier AISI 4135 après fissuration en fatigue [51].	42
Figure I.2.17. Aspect d'un faciès de rupture pour un acier AISI 4135 trempé revenu obtenu après essai de traction sur une éprouvette pré-chargée en hydrogène [50].	43
Figure I.2.18. Courbes de traction obtenues avec et sans pré-chargement en hydrogène pour un acier AISI 4135 [50].	43
Figure I.2.19. Variations de la contrainte à rupture en fonction du temps d'exposition : a) B13 ; b) B15 [52].	44
Figure I.3.1. Définition du taux de recouvrement $\theta$ sur la surface S [3].	45
Figure I.3.2. Nombre de sites de piégeage dans du fer pur en fonction de la déformation plastique équivalente [6].	50
Figure I.3.3. Zone cohésive, définie par l'ouverture tangentielle selon t et l'ouverture normale selon n [69].	51
Figure I.4.1. Géométrie "SSY" et conditions aux limites utilisées [62].	53
Figure I.4.2. Répartition de l'hydrogène diffusif normalisé $C_I/C_0$ , de l'hydrogène piégé $C_T/C_0$ et de l'hydrogène total $C_H/C_0$ le long de la fissure ( $R = 0$ correspondant à la pointe de l'entaille) [62].	53
Figure I.4.3. Répartition des concentrations d'hydrogène normalisées pour différentes vitesses de chargement : a) hydrogène diffusif et b) hydrogène piégé [60].	54
Figure I.4.4. Répartition des concentrations d'hydrogène normalisées pour différentes vitesses de chargement : a) hydrogène diffusif et b) hydrogène piégé [72].	54
Figure I.4.5. Temps à l'initiation de la fissure en fonction du niveau de contrainte pour (P) la loi traction-séparation polynômiale et (L) linéaire pour différentes taille d'éléments, avec a) une éprouvette entaillée en U et b) une éprouvette entaillée en V [74].	55
Figure I.4.6. a) Géométrie du tube et b) agrandissement de la zone pré-fissurée [76].	55
Figure I.4.7. Répartition à différentes pressions internes de : a) la concentration d'hydrogène diffusif normalisée et b) la contrainte hydrostatique [76].	56
Figure I.4.8. Configuration et conditions aux limites du problème [77].	56
Figure I.4.9. Concentration d'hydrogène diffusif normalisée dans la structure polycristalline [77].	57

Figure I.4.10. Schéma de résolution du problème couplé mécanique-diffusion dans Abaqus [38].	58
Figure I.4.11. Concentration d'hydrogène piégé pour deux relations $C_L-C_T$ : a) relation saturante et b) relation linéaire [38].	59
Figure I.4.12. a) Microstructure virtuelle et b) maillage hexaédrique du polycristal étudié [38].	59
Figure I.4.13. Emplacement de l'agrégat polycristalin dans l'éprouvette pliée en U [38].	60
Figure I.4.14. Répartition dans l'agrégat polycristallin des concentrations normalisées d'hydrogène : a) diffusif et b) piégé [38].	60
Figure I.4.15. Représentation schématique de l'essai de gonflement [80] avec : $p$ la pression, $t_0$ l'épaisseur initiale, $t$ l'épaisseur après déformation, $h$ la flèche du dôme, $\rho$ le rayon de courbure du dôme, $Q$ le couple de serrage, et $r$ le rayon de courbure de l'outil de maintien.	61
Figure I.4.16. Prédiction de la fissuration dans la simulation d'un essai de gonflement : a) à 256 MPa, b) à 260 MPa et c) fissuration expérimentale à 230 MPa [86].	61
Figure I.4.17. Contrainte de von Mises sur la face inférieure du disque modifié à différentes pressions [3].	62
Figure I.4.18. Modélisation de l'essai de disque : configuration, conditions aux limites, maillage et positionnement des zones cohésives dans la zone supposée de rupture [70].	63
Figure I.4.19. Comparaison des pressions de rupture obtenues par simulation numérique et par essai de disque [70].	64
Figure II.1.1. Plan de la bouteille avec l'emplacement des 4 viroles découpées et représentation des axes cylindriques : a) vue de dessus et b) vue en coupe. Les dimensions sont en mm.	74
Figure II.1.2. Plan de découpe des échantillons : a) un disque et b) une éprouvette de traction. Les dimensions sont en mm.	75
Figure II.1.3. a) Photo de la virole 1 ( $V_1$ ) vue de face et b) schéma en vue du dessus de l'emplacement des échantillons dans l'épaisseur de la bouteille.	75
Figure II.1.4. Emplacement schématique des échantillons dans le fût développé de la bouteille.	76
Figure II.2.1. Chute de découpe et localisation (rectangle en pointillés) de l'échantillon prélevé pour les mesures de microdureté.	76
Figure II.2.2. Localisation des profils de microdureté dans l'épaisseur de la bouteille : ext. fait référence à la paroi externe, int. à la paroi interne et e à l'épaisseur de la virole.	77
Figure II.2.3. Photo de la surface de l'échantillon après indentation.	77
Figure II.2.4. Résultats des mesures de microdureté.	77
Figure II.2.5. Représentation schématique de l'emplacement des éprouvettes utilisées et indication du type de pilotage.	78
Figure II.2.6. Courbes de traction : en traits pleins pour la virole $V_1$ ; en pointillés pour la virole $V_2$ ; les courbes en gras correspondent à un pilotage traverse. Le schéma à droite rappelle la position des viroles dans le fût.	79
Figure II.2.7. Variations de $R_e$ et $R_m$ en fonction de la position de prélèvement.	80
Figure II.2.8. Allongement à rupture en fonction de la position angulaire des éprouvettes de traction sur les viroles $V_1$ et $V_2$ .	81
Figure II.2.9. Microdureté Vickers des têtes des éprouvettes de traction de la virole $V_1$ .	81
Figure II.3.1. MEB-FEG : a) Supra 40VP utilisé au LSPM et b) Ultra 55 utilisé au CRPS.	82
Figure II.3.2. Exemple de lignes de Kikuchi.	83
Figure II.3.3. Goniomètres du LSPM : a) détecteur ponctuel pour la mesure de texture et b) détecteur courbe sur $120^\circ$ pour la mesure de spectre de diffraction.	84
Figure II.3.4. Figures de pôle mesurées sur l'échantillon Ech-1 de normale $Z_B$ .	86
Figure II.3.5. Figures de pôle mesurées sur l'échantillon Ech-2 de normale $\theta_B$ .	86

Figure II.3.6. Figures de pôle mesurées sur l'échantillon Ech-3 de normale $R_B$ .	86
Figure II.3.7. Comparaison du spectre ( $\theta$ , $2\theta$ ) de l'échantillon Ech-5 (bleu foncé) et des pics du fer $\alpha$ (bleu clair).	87
Figure II.3.8. Images MEB-FEG de l'échantillon prélevé dans la virole $V_3$ : a) aperçu de la microstructure et b) agrandissement de la zone entourée en rouge.	88
Figure II.3.9. Images MEB de la virole $V_3$ : a) bord extérieur ; b) mi-épaisseur et c) bord intérieur.	88
Figure II.3.10. Figures de pôle obtenues par analyse EBSD sur un échantillon de normale $R_B$ .	89
Figure II.3.11. Figures de pôle de la zone analysée par EBSD de normale $R_B$ .	89
Figure II.3.12. Cartographies IPF de la direction a) $R_B$ et b) $Z_B$ .	90
Figure II.3.13. Distribution du facteur de forme des grains.	90
Figure II.3.14. Histogramme des désorientations.	91
Figure II.3.15. Comparaison des distributions des angles de désorientation pour différentes microstructures : a) bainite et ferrite et b) martensite et bainite [7].	91
Figure II.3.16. Cartographies : a) du paramètre IQ seul et b) superposition de la cartographie des angles de désorientation de $45$ à $65^\circ$ avec la cartographie du paramètre IQ.	92
Figure II.3.17. Profil de désorientation d'un grain dans la zone entourée en noir à la Figure II.3.16 : a) le grain considéré et b) le profil obtenu.	92
Figure II.3.18. Profil de désorientation entre les grains dans la zone entourée en noir à la Figure II.3.16 : a) grains considérés et b) profil obtenu.	93
Figure III.1.1. a) Banc d'essai de disque destiné aux essais sous He utilisé au CTE. Les cinq voies de circulation de gaz sont localisées par les vannes rouges. b) bride supérieure utilisée pour les essais de disque.	96
Figure III.1.2. Evolution de la pression en fonction du temps pour les disques d'épaisseur $e_1 = 0,75$ mm et comparaison à la vitesse de référence $v_p = 0,1$ MPa/min.	96
Figure III.1.3. Représentation schématique de l'instrumentation de la cellule d'essai.	97
Figure III.1.4. Emplacement des disques dans la bouteille.	98
Figure III.1.5. Valeur moyenne et dispersion des mesures de rugosité de la face 1 des disques à l'état brut prélevés dans les viroles $V_1$ , $V_2$ et $V_3$ .	99
Figure III.1.6. Valeur moyenne et dispersion des mesures de rugosité de la face 2 des disques à l'état brut prélevés dans les viroles $V_1$ , $V_2$ et $V_3$ .	100
Figure III.1.7. Rugosité moyenne et dispersion mesurée de la face 2 des disques témoins.	101
Figure III.1.8. Rugosité moyenne avec barres d'erreur de la face 2 des disques d'épaisseur $e_2$ issus de la virole $V_4$ et des disques témoins.	101
Figure III.1.9. Vue de dessous d'un disque d'épaisseur $e_2 = 1,20$ mm après essai à rupture et localisation des points de mesure de dureté Brinell et Vickers (croix blanches).	102
Figure III.1.10. Mesures de dureté Vickers (Hv) en bleu et Brinell (HB) en rouge sur les disques d'épaisseur $e_1$ issus des viroles $V_1$ et $V_2$ .	102
Figure III.1.11. Mesures de dureté Brinell (HB) sur les disques d'épaisseur $e_2$ issus de la virole $V_2$ .	103
Figure III.1.12. Mesures de dureté Brinell (HB) sur les disques d'épaisseur $e_3$ issus de la virole $V_4$ .	103
Figure III.1.13. Représentation schématique en vue du dessus du positionnement des maxima et des minima de dureté selon les axes de prélèvement des disques pour les viroles: a) $V_1$ , b) $V_2$ et c) $V_3$ .	104
Figure III.2.1. Pression de rupture en fonction de la rugosité avec barres d'erreurs.	105
Figure III.2.2. Vue du dessus du disque V2D2.2 (état brut) rompu sous $H_2$ .	105

Figure III.2.3. Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D2.3 (état brut de rectification) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.....	106
Figure III.2.4. Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D4.3 (état poli grade 220, procédure CTE) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.....	107
Figure III.2.5. Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D5.3 (état poli grade 800) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge.....	107
Figure III.2.6. Fissuration macroscopique, délimitée par les flèches noires, sur la face interne disque V2D7.3 (état poli grade 4000, état miroir) : a) vue panoramique et b) agrandissement de la zone cerclée en rouge. ....	108
Figure III.2.7. Fissuration, indiquée par les flèches noires, s'appuyant localement sur les rayures de polissage sur le disque V2D4.1 (grade 220).....	108
Figure III.2.8. Fissuration, indiquée par les flèches noires, s'appuyant localement sur les rayures de polissage sur le disque V2D5.2 (grade 800).....	109
Figure III.2.9. Microfissuration sur le disque V2D8.1 (grade 4000) : a) vue globale et b) agrandissement de la zone entourée en noir. ....	109
Figure III.2.10. Microfissuration s'appuyant localement sur les stries de rectification sur l'état brut (disque V2D2.2).....	110
Figure III.2.11. Fissuration, entourée en noir, à l'état brut (disque V2D1.1) dans une section radiale où $r_a$ est colinéaire à $Z_B$ . ....	110
Figure III.2.12. Absence de fissuration dans le grade SiC 800 (disque V2D6.2) dans une section radiale où $r_a$ est colinéaire à $Z_B$ . ....	111
Figure III.2.13. Fissuration, entourée en noir, dans le grade SiC 800 (disque V2D6.2) dans une section radiale où $r_a$ est orthogonal à $Z_B$ .....	111
Figure III.2.14. Pressions de rupture sous hélium et sous hydrogène en fonction de l'épaisseur des disques. ....	112
Figure III.2.15. Photo de disques d'épaisseur $e_1 = 0,75$ mm rompus sous He : a) vue globale du disque V1D6.1 et b) vue en coupe radiale du disque V1D5.2, la flèche verte indique le point d'observation du faciès de rupture (voir paragraphe III.3.a.i.).....	112
Figure III.2.16. Evolution de l'indice de fragilisation moyen en fonction de l'épaisseur avec barres d'erreur représentant l'écart type des valeurs d'indice calculées.....	113
Figure III.2.17. Pression de rupture sous hélium en fonction de la vitesse de pressurisation en échelle a) linéaire et b) logarithmique. ....	114
Figure III.2.18. Pression de rupture sous hydrogène en fonction de la vitesse de pressurisation en échelle a) linéaire et b) logarithmique. ....	114
Figure III.2.19. Evolution de la pression de rupture sous He en fonction de la dureté moyenne des disques avec barre d'erreur pour les trois épaisseurs de disque. ....	115
Figure III.2.20. Evolution de la pression de rupture sous $H_2$ en fonction de la dureté moyenne des disques avec barre d'erreur pour les trois épaisseurs de disque. ....	116
Figure III.2.21. a) Comparaison des courbes flèche-pression sous $H_2$ des disques d'épaisseur $e_1 = 0,75$ mm, la couleur correspondant au grade de polissage : vert pour le grade SiC 220, rouge pour le grade SiC 800 et bleu pour le grade SiC 4000 et b) schéma illustrant le principe de la mesure de flèche. ....	117
Figure III.2.22. Comparaison des courbes flèche-pression obtenues sous $H_2$ et sous He pour les disques d'épaisseur $e_2 = 1,20$ mm.....	118



Figure III.2.23. Comparaison des courbes flèche-pression obtenues sous H <sub>2</sub> et sous He pour les disques d'épaisseur e <sub>3</sub> = 1,50 mm.....	118
Figure III.2.24. Courbes flèche-pression sous H <sub>2</sub> corrigées avec le coefficient C(e) des disques d'épaisseur e <sub>1</sub> = 0,75 mm. Le code couleur utilisé est celui de la Figure III.2.21.....	119
Figure III.2.25. Courbes flèche-pression sous H <sub>2</sub> et sous He corrigées avec le coefficient C(e) pour les disques d'épaisseur e <sub>2</sub> = 1,20 mm.....	120
Figure III.2.26. Courbes flèche-pression sous H <sub>2</sub> et sous He corrigées avec le coefficient C(e) pour les disques d'épaisseur e <sub>3</sub> = 1,50 mm.....	120
Figure III.2.27. Choix des pressions d'arrêts sur les courbes expérimentales obtenues sous H <sub>2</sub> : flèches bleues pour l'épaisseur e <sub>1</sub> = 0,75 mm ; flèches rouges pour l'épaisseur e <sub>3</sub> = 1,50 mm. ....	121
Figure III.2.28. Principe de la profilométrie sans contact à imagerie confocale chromatique [2]. .....	122
Figure III.2.29. Profil des faces supérieures des disques d'épaisseur e <sub>1</sub> = 0,75 mm déformés sous He et sous H <sub>2</sub> pour la pression : a) P <sub>1</sub> = 13 MPa, b) P <sub>2</sub> = 20 MPa et c) P <sub>3</sub> = 27 MPa.....	122
Figure III.2.30. Profil des faces supérieures des disques e <sub>3</sub> = 1,50 mm déformés aux différentes pressions d'arrêt : a) sous He et b) sous H <sub>2</sub> .....	123
Figure III.2.31. Comparaison des flèches mesurées au cours de l'essai et celles obtenues par mesures de profil pour les disques d'épaisseur e <sub>3</sub> = 1,50 mm : a) sous He et b) sous H <sub>2</sub> .....	123
Figure III.3.1. Aspect du faciès de rupture du disque V1D5.2 rompu sous He : a) aspect général et b) vue détaillée. c) la flèche verte indique la localisation du point d'observation.....	124
Figure III.3.2. Fissuration dans le disque V2D1.3 d'épaisseur e <sub>3</sub> = 1,50 mm dans une section radiale où r <sub>d</sub> est colinéaire à Z <sub>B</sub> : a) la fissuration dans l'épaisseur est inclinée de α = 45° par rapport à l'axe radial disque et b) détails de la zone entourée en pointillés où de nombreuses cavités sont visibles.....	125
Figure III.3.3. Cartographies de figures de pôles inverses de la zone analysée : a) IPF selon l'axe θ <sub>B</sub> ; b) IPF selon l'axe Z <sub>B</sub> .....	126
Figure III.3.4. Distribution du facteur de forme des grains, un joint de grain étant défini par une désorientation supérieure à 15°.....	127
Figure III.3.5. Aspect du faciès de rupture sous H <sub>2</sub> dans la zone de rupture fragile au niveau de la face inférieure du disque. Le cercle rouge sur la représentation schématique du disque indique le lieu d'observation du faciès de rupture.....	128
Figure III.3.6. Aspect du faciès de rupture dans la zone de transition dans l'épaisseur.....	128
Figure III.3.7. Aspect du faciès de rupture dans la zone de rupture ductile au niveau de la face supérieure du disque.....	129
Figure III.3.8. Ramification de la fissuration dans une section radiale où r <sub>d</sub> est colinéaire à Z <sub>B</sub> .....	129
Figure III.3.9. Agrandissement de la zone entourée en rouge à la Figure III.3.8.....	130
Figure III.3.10. Détails de la microfissuration.....	130
Figure III.3.11. Cartographies de figures de pôles inverses de la zone analysée : a) IPF selon l'axe θ <sub>B</sub> ; b) IPF selon l'axe Z <sub>B</sub> .....	131
Figure III.3.12. Cartographies de figures de pôles inverses de la direction θ <sub>B</sub> : a) disque V2D7.3 d'épaisseur e <sub>1</sub> et illustration des profils de désorientation, b) disque V2D6.2 d'épaisseur e <sub>1</sub> et c) disque V2D6.1 d'épaisseur e <sub>3</sub> .....	132
Figure III.3.13. Fréquence d'apparitions des angles de désorientations rencontrés de part et d'autre des fissures.....	132
Figure III.3.14. Comparaison du « kernel moyen de désorientation » correspondant aux cartographies des Figure III.3.3 et Figure III.3.11.....	133



Figure III.3.15. Vue de la surface des disques à la pression d'arrêt $P_1 = 13$ MPa : a) disque testé sous $H_2$ et b) sous He.....	134
Figure III.3.16. Vue de la surface des disques à la pression d'arrêt $P_2 = 20$ MPa sous $H_2$ .....	135
Figure III.3.17. Surface du disque à la pression d'arrêt $P_2 = 20$ MPa sous He : a) vue globale et b) agrandissement de la zone cerclée en noir. ....	135
Figure III.3.18. Vue de la surface des disques à la pression d'arrêt $P_2 = 27$ MPa sous $H_2$ .....	136
Figure III.3.19. Surface du disque à la pression d'arrêt $P_3 = 27$ MPa sous He : a) vue globale et b) agrandissement de la zone cerclée en noir. ....	136
Figure III.3.20. Vue de la surface des disques sous $H_2$ aux pressions d'arrêt : a) $P'_1 = 35$ MPa et b) $P'_3 = 47$ MPa.....	137
Figure III.3.21. Vue en coupe de l'essai de disque et localisation des zones analysées par EBSD (entourée en noir). ....	138
Figure III.3.22. Comparaison des kernels de désorientation pour les disques d'épaisseurs $e_1 = 0,75$ mm après essais interrompus sous $H_2$ et sous He. ....	138
Figure III.3.23. Comparaison des kernels de désorientation pour les disques d'épaisseurs $e_3 = 1,50$ mm après essais interrompus sous $H_2$ . ....	138
Figure III.3.24. Cartographies de figure de pôles inverses de la direction $\theta_b$ dans des disques d'épaisseur $e_1 = 0,75$ mm testé : a), c) et e) sous $H_2$ pour les pressions d'arrêt respectives $P_1$ , $P_2$ et $P_3$ ; b), d) et f) sous He pour les pressions d'arrêt respectives $P_1$ , $P_2$ et $P_3$ .....	139
Figure IV.1.1. Modélisation de « l'essai de disque » : configuration et conditions aux limites (d'après [2])......	144
Figure IV.1.2. Maillage du disque : exemple pour l'épaisseur $e = 0,75$ mm. ....	145
Figure IV.1.3. Comparaison des lois d'écrouissage identifiées aux courbes de traction expérimentales.....	146
Figure IV.1.4. Comparaison des courbes flèche-pression expérimentale et numérique pour l'épaisseur $0,75$ mm. ....	147
Figure IV.1.5. Comparaisons expérimentales et numériques (paramètres V2T5) des mesures de profil pour l'épaisseur de disque $0,75$ mm aux pressions : a) $P_1 = 13$ MPa; $P_2 = 20$ MPa et $P_3 = 27$ MPa.....	148
Figure IV.1.6. Comparaison des courbes flèche-pression expérimentale et numérique pour l'épaisseur $1,50$ mm. ....	149
Figure IV.1.7. Influence du module apparent sur les courbes flèche-pression et comparaison avec la courbe flèche pression expérimentale minimale pour l'épaisseur $1,50$ mm. ....	150
Figure IV.1.8. Comparaisons expérimentales et numériques (paramètres V2T5) des mesures de profil pour l'épaisseur de disque $1,50$ mm aux pressions : a) $P'_1 = 35$ MPa; $P'_2 = 40$ MPa et $P'_3 = 47$ MPa. ....	150
Figure IV.1.9. Comparaison des courbes flèche-pression simulées avec les valeurs expérimentales : a) épaisseur $0,75$ mm et b) épaisseur $1,50$ mm, simulations réalisées avec le jeu de paramètres V2T5.....	151
Figure IV.2.1. Superposition de l'état initial (en pointillés), de la déformée (en vert), localisation des fibres interne et externe et de la zone d'intérêt pour l'étude des champs locaux. ....	152
Figure IV.2.2. Cartographies iso-valeurs des contraintes principales dans le disque d'épaisseur $0,75$ mm à $P_{ruptH_2} = 29$ MPa : a) $\sigma_{max}$ ; b) $\sigma_{mid}$ et c) $\sigma_{min}$ . ....	154
Figure IV.2.3. Cartographies iso-valeurs des contraintes principales dans le disque d'épaisseur $0,75$ mm à $P_{ruptHe} = 54$ MPa : a) $\sigma_{max}$ ; b) $\sigma_{mid}$ et c) $\sigma_{min}$ . ....	155
Figure IV.2.4. Cartographies iso-valeurs de $\epsilon_{eq}$ dans le disque d'épaisseur $0,75$ mm : a) à $P_{ruptH_2} = 29$ MPa et b) à $P_{ruptHe} = 54$ MPa. ....	155

Figure IV.2.5. Cartographies iso-valeurs dans le disque d'épaisseur 1,50 mm à $P'_{ruptH2} = 54$ MPa : a) $\sigma_{max}$ et b) $\epsilon_{eq}$ .....	156
Figure IV.2.6. Cartographies iso-valeurs dans le disque d'épaisseur 1,50 mm à $P'_{ruptHe} = 108$ MPa : a) $\sigma_{max}$ et b) $\epsilon_{eq}$ .....	157
Figure IV.2.7. Courbes flèche-pression calculées pour différentes épaisseurs de disque avec les paramètres V2T5. ....	157
Figure IV.2.8. Profils de contrainte maximale principale le long de la fibre interne des disques aux valeurs de flèche : a) 1 mm, b) 2 mm et c) 3 mm. ....	158
Figure IV.2.9. Cartographies iso-valeurs de la contrainte maximale principale dans la zone d'intérêt à la valeur de flèche de 3 mm pour les épaisseurs : a) 0,75 mm ; b) 1,50 mm ; c) 2,00 mm et d) 2,50 mm. ....	159
Figure IV.2.10. Profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne des disques avec localisation du rayon de courbure $R_c$ aux valeurs de flèche : a) 1 mm, b) 2 mm et c) 3 mm.....	159
Figure IV.2.11. Profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne sur l'épaisseur 0,75 mm aux pressions : a) $P_{ruptH2} = 29$ MPa et b) $P_{ruptHe} = 54$ MPa. ....	161
Figure IV.2.12. Profils de contrainte maximale principale le long de la fibre interne sur l'épaisseur 0,75 mm aux pressions : a) $P_{ruptH2} = 29$ MPa et b) $P_{ruptHe} = 54$ MPa.....	162
Figure IV.2.13. Profils de déformation plastique équivalente le long de la fibre interne sur l'épaisseur 1,50 mm aux pressions : a) $P'_{ruptH2} = 53$ MPa et b) $P'_{ruptHe} = 108$ MPa.....	163
Figure IV.2.14. Profils de contrainte maximale principale le long de la fibre interne sur l'épaisseur 1,50 mm aux pressions : a) $P'_{ruptH2} = 53$ MPa et b) $P'_{ruptHe} = 108$ MPa.....	164
Figure IV.2.15. Cartographies iso-valeurs de $\sigma_{mises}$ dans la zone d'intérêt du disque d'épaisseur 0,75 mm : a) et c) à $P_{ruptH2} = 29$ MPa et b) et d) à $P_{ruptHe} = 54$ MPa. Avec les jeux de paramètres : a) et b) V2T5 ; c) et d) V2T6. ....	165
Figure IV.2.16. Cartographies iso-valeurs de $\sigma_{mises}$ dans la zone d'intérêt du disque d'épaisseur 1,50 mm : a) et c) à $P'_{ruptH2} = 53$ MPa et b) et d) à $P'_{ruptHe} = 108$ MPa. Avec les jeux de paramètres : a) et b) V2T5 ; c) et d) V2T6.....	165
Figure IV.2.17. Cartographies iso-valeurs de déformation plastique équivalente dans les disques d'épaisseur 0,75 mm à $P_{ruptHe} = 54$ MPa : a) paramètres V2T5 et b) paramètres V2T6.....	166
Figure IV.3.1. Représentation du secteur angulaire pour la simulation de l'endommagement ductile : exemple pour l'épaisseur 0,75 mm. ....	167
Figure IV.3.2. Maillage du disque : exemple pour l'épaisseur $e = 0,75$ mm.....	168
Figure IV.3.3. Courbes flèche-pression numériques et pressions de rupture potentielles sous He (traits noirs) calculées par la modélisation 3D avec endommagement ductile de l'essai de disque. ....	170
Figure IV.3.4. Comparaison des courbes flèche-pression expérimentales et numériques pour l'épaisseur 1,50 mm .....	170
Figure IV.3.5. Cartographies iso-valeurs de la contrainte maximale principale en fin de calcul dans les disques d'épaisseurs : a) 0,75 mm ; b) 1,50 mm ; c) 2,00 mm et d) 2,50 mm. ....	171
Figure V.1.1. Détection numérique de la rupture dans la simulation S1. ....	175
Figure V.1.2. Evolution de la contrainte principale maximale dans la simulation S1 à différents incréments de calculs : a) 169, b) 172, c) 173 (ouverture de la ZC) et d) 443 (fin de calcul). ....	175
Figure V.1.3. Comparaison des pressions de rupture expérimentale (avec barres d'erreur) et numérique.....	176
Figure V.2.1. Loi de piégeage saturante utilisée dans les simulations.....	178

Figure V.2.2. Schéma de résolution du problème couplé mécanique-diffusion dans Abaqus [2]. .....	179
Figure V.3.1. Cartographies iso-valeurs de la concentration normalisée d'hydrogène diffusif dans la zone de rupture potentielle à différentes pressions : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	181
Figure V.3.2. Distribution de la concentration normalisée d'hydrogène diffusif dans l'ensemble du disque à 35 MPa. ....	181
Figure V.3.3. Distribution de la pression hydrostatique dans l'ensemble du disque à 35 MPa. ..	181
Figure V.3.4. Cartographies iso-valeurs de la concentration normalisée d'hydrogène piégé aux pressions : a) 25 MPa ; b) 35 MPa. ....	182
Figure V.3.5. Cartographies iso-valeurs de la concentration normalisée d'hydrogène total aux pressions : a) 25 MPa ; b) 35 MPa. ....	182
Figure V.3.6. Distribution de la concentration d'hydrogène normalisée total dans l'ensemble du disque à 35 MPa. ....	182
Figure V.4.1. Schéma de principe de l'identification inverse, la distribution des orientations cristallines est considérée isotrope. ....	185
Figure V.4.2. Comparaison des courbes expérimentales et numériques pour l'identification des paramètres d'écrouissage : cas du paramètre $h_0$ . ....	185
Figure V.4.3. Localisation de l'agrégat polycristallin dans la simulation d'essai de disque. ....	186
Figure V.4.4. Variables des nœuds N1 et N2 transférés dans le submodelling : a) déplacement et b) concentration normalisée d'hydrogène. ....	186
Figure V.4.5. Application des conditions aux limites sur : a) le MHE et b) l'agrégat polycristallin. ....	187
Figure V.4.6. Distribution de la contrainte équivalente de von Mises dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	188
Figure V.4.7. Distribution de la déformation plastique équivalente dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	188
Figure V.4.8. Distribution de la pression hydrostatique dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	189
Figure V.4.9. Distribution de la concentration normalisée en hydrogène diffusif dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	190
Figure V.4.10. Distribution de la concentration normalisée en hydrogène piégé dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	191
Figure V.4.11. Distribution de la concentration normalisée en hydrogène total dans l'agrégat polycristallin vu en coupe médiane (x,z) aux pressions de : a) 15 MPa, b) 25 MPa et c) 35 MPa. ....	191
Figure V.4.12. Histogrammes de la densité de probabilité de l'indice de rupture $i_{rupt}$ à : a) 25 MPa et b) 35 MPa. ....	193
Figure V.4.13. Probabilité de rupture en fonction de la pression. ....	193

## 2. Tableaux

Tableau I.1.1. Classification des pièges présents dans des alliages de Fe-Ti et de Fe-Ti-C. E (piège-H) désigne l'énergie de piégeage [4].	24
Tableau I.2.1. Traitements thermiques des aciers exposés [52].	43
Tableau II.1.1. Composition chimique (en % massique) du matériau [1].	73
Tableau II.2.1. Type de microstructure en fonction de la dureté Brinell pour une nuance d'acier AISI 4135 [3].	78
Tableau III.1.1. Epaisseur des disques avant et après polissage.	100
Tableau III.2.1. Récapitulatif de la fissuration sur les différents états de surface.	106
Tableau III.2.2. Pressions de rupture moyennes et indice de fragilisation moyens calculés pour les différentes épaisseurs de disques.	113
Tableau III.2.3. Calculs de la dispersion des courbes flèche-pression pour les trois épaisseurs de disque testés sous He et sous H <sub>2</sub> .	117
Tableau III.2.4. Calculs des dispersions des courbes flèche-pression pour les trois épaisseurs de disque testés sous He et sous H <sub>2</sub> après correction des courbes.	119
Tableau III.2.5. Plan d'expérience des essais de disque interrompus.	121
Tableau IV.1.1. Epaisseurs considérées et nombre et taille des éléments correspondants.	144
Tableau IV.1.2. Paramètres utilisés pour l'élastoplasticité isotrope.	146
Tableau IV.2.1. Pressions de rupture expérimentales sous He et sous H <sub>2</sub> issus du Tableau III.2.2. Les valeurs moyennes sont celles utilisées comme valeur maximale dans les simulations	153
Tableau IV.3.1. Tailles des éléments finis utilisés dans la modélisation de l'essai de disque.	168
Tableau IV.3.2. Paramètres utilisés pour la modélisation de l'endommagement ductile [6].	169
Tableau V.1.1. Paramètres matériaux utilisés.	174
Tableau V.1.2. Paramètres hydrogène utilisé pour la prise en compte de l'hydrogène sur la rupture [1].	174
Tableau V.1.3. Récapitulatif des simulations avec zones cohésives réalisées.	174
Tableau V.1.4. Pressions de rupture numériques obtenues pour différentes valeurs de $\sigma_{max}^0$ dans les simulations S3 et S4 et comparaison aux pressions de rupture expérimentales.	176
Tableau V.2.1. Paramètres hydrogène liés à la diffusion et au piégeage.	180
Tableau V.4.1. Paramètres mécaniques du comportement polycristallin.	184



### **Résumé :**

Ce travail est consacré à l'analyse expérimentale et numérique de l'essai normalisé de disque à rupture utilisé pour la sélection des matériaux métalliques sensibles à l'hydrogène et vise notamment à évaluer la potentielle extension de l'essai à des pressions plus élevées. L'étude a porté sur un acier AISI 4135 constitutif des bouteilles de stockage d'hydrogène gazeux. Des essais de disques réalisés sous He et sous H<sub>2</sub> ont permis d'étudier l'influence de différents paramètres sur les pressions de rupture et de disposer de courbes flèche-pression expérimentales. La réponse de l'essai pour des pressions supérieures au domaine d'usage actuel a été étudiée avec des disques de différentes épaisseurs. La caractérisation par MEB-EBSD de disques rompus ou fissurés a permis d'observer la fissuration à différentes échelles dans la microstructure bainitique.

La simulation par éléments finis de l'essai de disque a permis d'analyser l'influence de différents paramètres sur la distribution des champs mécaniques dans le disque et a conduit à une confrontation satisfaisante avec les résultats expérimentaux. Les pressions de rupture sous He ont été obtenues par une simulation d'endommagement ductile, et les pressions de rupture sous H<sub>2</sub> ont été décrites à l'aide d'éléments cohésifs. Les distributions d'hydrogène diffusif et piégé dans le matériau au cours de l'essai de disque ont été obtenues par la prise en compte de la diffusion assistée par la pression hydrostatique et de l'évolution du piégeage avec la déformation plastique. L'extension de la simulation à l'échelle du polycristal ouvre la voie à des critères de fragilisation tenant compte des hétérogénéités microstructurales.

**Mots-clés :** essai de disque, hydrogène, MEB-EBSD, éléments finis, acier AISI 4135

---

### **Abstract:**

This work focused on the experimental and numerical analysis of the normalized disk pressure test used to select metallic materials hydrogen sensitive and particularly aimed to evaluate the potential extension of the test to higher pressures. The study focused on an AISI 4135 steel, which composed hydrogen gas storage vessels. Disk pressure tests had been leading under helium and hydrogen gas in order to study the influence of some parameters on failure pressures and to obtain experimental deflection-pressure curves. The response of the test for pressures higher than in the usual domain of specifications was studied for different disk thickness. SEM-EBSD characterization of failed or cracked disks allowed examining cracks at different scales in the bainitic microstructure.

Finite element simulations of disk pressure test permitted to analyze the influence of different parameters on mechanical field distributions in the disk and led to a satisfying comparison with experimental results. Helium failure pressures were obtained by a ductile damage computation; and hydrogen failure pressures were described thanks to a cohesive elements model. Distributions of diffusive and trapped hydrogen in the material during a disk pressure test were obtained considering hydrogen diffusion is assisted by the hydrostatic pressure and the evolution of trapping with strain. Extension of the simulation at polycrystalline scale open the way to embrittlement index; taking into account microstructural heterogeneities.

**Keywords:** disk pressure test, hydrogen, SEM-EBSD, finite element, AISI 4135 steel