



HAL
open science

Effet des chargements thermiques sur le transport et le piégeage de l'hydrogène dans les matériaux métalliques

S. Benannoune, Y Charles, J. Mougenot, M. Gasperini, G. de Temmerman

► To cite this version:

S. Benannoune, Y Charles, J. Mougenot, M. Gasperini, G. de Temmerman. Effet des chargements thermiques sur le transport et le piégeage de l'hydrogène dans les matériaux métalliques. Journées Jeunes Chercheurs 2019 CEFACOR, May 2019, Poitiers, France. hal-02190750

HAL Id: hal-02190750

<https://sorbonne-paris-nord.hal.science/hal-02190750>

Submitted on 24 Jul 2019

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.

Effet des chargements thermiques sur le transport et le piégeage de l'hydrogène dans les matériaux métalliques

S. Benannoune¹, Y. Charles¹, J. Mougenot¹, M. Gaspérini¹ et G. De Temmerman²

1 : Seine-Saint-Denis, Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux
LSPM, CNRS, UPR 3407, Université Paris 13, Sorbonne Paris Cité
99 avenue Jean-Baptiste Clément, F-93430 Villetaneuse, France

2 : Var, ITER Organization
Route de Vinon sur Verdon, CS90 046, F-13067 St Paul Lez Durance Cedex, France

Introduction

Le couplage des chargements mécaniques et/ou thermiques avec la diffusion et le piégeage d'hydrogène dans les matériaux métalliques a un rôle important dans de nombreuses applications [1]. Dans le cas de chargements mécaniques quasi-statiques, l'hypothèse classique d'équilibre thermodynamique formulée par Oriani [2], correspondant au piégeage instantané de l'hydrogène, permet de comprendre l'impact de la déformation plastique sur la distribution d'hydrogène diffusif et piégé lors d'essais complexes (essai de disque [3] sous pression d'hydrogène gazeux, de pliage en U [4], ou de traction sur un polycristal de fer [5]). Pour des matériaux à cinétique de piégeage lente (par exemple lors de la diffusion d'hydrogène dans du tungstène), et/ou des chargements d'hydrogène brefs ou discontinus, la cinétique de piégeage doit cependant être prise en compte par la résolution de l'équation de McNabb et Foster [6] à la place de l'équilibre d'Oriani [7]. L'aspect transitoire du piégeage doit également être pris en compte dans le cas de chargements thermiques, notamment pour reproduire des spectres de TDS (*Thermal Desorption Spectroscopy*) [8, 9].

Dans le but d'analyser l'impact des chargements thermiques sur le transport d'hydrogène dans des structures complexes, des simulations numériques par éléments finis couplant cinétique de piégeage, champs mécaniques et résolution de l'équation de chaleur ont été réalisées à l'aide d'Abaqus [10]. Les développements numériques spécifiques et implémentations nécessaires à la prise en compte de phénomènes de diffusions multiples sont présentés, ouvrant de nouvelles perspectives par rapport aux travaux antérieurs [3]. Les

capacités du modèle sont ainsi illustrées par des confrontations avec des résultats expérimentaux de TDS issus de la littérature, dans des contextes variés (chargement en hydrogène par pression ou par plasma) pour le fer et le tungstène. Enfin, ces outils numériques sont appliqués à l'analyse de l'effet de forts gradients thermiques sur le transport d'hydrogène dans un matériau face au plasma, problématique rencontrée dans le futur tokamak d'ITER [11].

Dans ce document, le terme 'hydrogène' sera utilisé de façon indifférente pour l'hydrogène (H), le deutérium (D) et le tritium (T).

Modèle du transport et piégeage d'hydrogène avec couplage thermique

La modélisation du transport de l'hydrogène est basée sur l'équation générale de diffusion et piégeage de l'hydrogène [1]. Cette équation a été modifiée pour tenir compte de plusieurs types de pièges (N_p) [7] :

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} + \sum_{i=1}^{N_p} \left[\theta_{T,i} \frac{\partial N_{T,i}}{\partial t} + N_{T,i} \frac{\partial \theta_{T,i}}{\partial t} \right] - \nabla \cdot \left(D_L \nabla C_L + D_L C_L \frac{V_H}{RT} \nabla P_H \right) - \Gamma = 0 \quad (1)$$

i représente le piège considéré. C_L (atomes/m³) et $C_{T,i}$ (atomes/m³) sont respectivement les concentrations d'hydrogène diffusif et piégé pour chaque piège i . θ_L et $\theta_{T,i}$ représentent les taux d'occupation C_L/N_L (atomes/sites) et $C_{T,i}/N_{T,i}$ (atomes/piège). N_L et $N_{T,i}$ sont les densités des sites interstitiels (sites/m³) et les densités de pièges (pièges/m³). D_L représente le coefficient de diffusion, V_H et P_H le volume molaire de l'hydrogène et la pression hydrostatique. R est la constante des gaz parfaits et T la température. Γ représente une implantation d'hydrogène en volume (exposition plasma).

Le piégeage transitoire est résolu en se basant sur une solution analytique approchée de l'équation différentielle de piégeage McNabb et Foster [6,7] :

$$\theta_{T,i} = \left(\theta_{T,i}^0 - \frac{p_i \theta_L}{p_i \theta_L + k_i} \right) [e^{-(p_i \theta_L + k_i)t}] + \frac{p_i \theta_L}{p_i \theta_L + k_i} \quad (2)$$

où p_i et k_i sont les fréquences de piégeage et de dépiégeage pour chaque piège i considéré. Cette approximation et l'implémentation dans Abaqus ont été précédemment validées [7].

La température est calculée en résolvant l'équation de la chaleur :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_T \Delta T \quad (3)$$

avec D_T le coefficient de diffusion thermique (m^2/s) qui dans une première approximation est considéré indépendant de la température.

L'ajout d'un problème thermique en plus de de diffusion de l'hydrogène et de mécanique nécessite l'ajout d'un degré de diffusion supplémentaire dans le logiciel Abaqus, ce qui a été rendu possible par l'utilisation d'une procédure *User Element* en plus des éléments classiques d'Abaqus [12]. Cela permet une résolution couplée et simultanée par Abaqus des problèmes thermomécaniques, de diffusion/piégeage transitoire d'hydrogène assistés par la température et les champs mécaniques, et de la diffusion transitoire de la chaleur.

Simulations numériques de spectres TDS

Le modèle ainsi développé a été utilisé pour reproduire des spectres expérimentaux de TDS pour deux matériaux avec des coefficients de diffusion d'hydrogène différents : le tungstène et le fer. La configuration des calculs est la même que celle donnée dans des travaux précédents (figure 1 dans [7]), sauf pour la partie thermique : la température est imposée sur les faces externes de l'échantillon, et diffuse ensuite de manière transitoire.

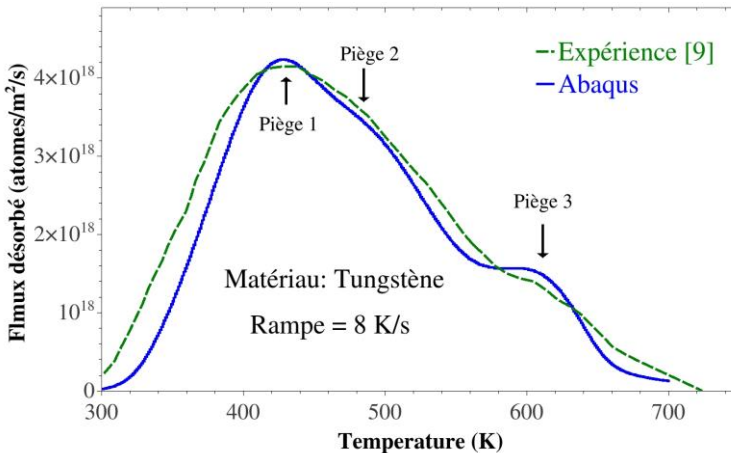


Figure 1. Comparaison entre les résultats du spectre TDS expérimental (courbe verte) et les résultats obtenus avec Abaqus (courbe bleue)

La Figure 1 illustre une TDS de deutérium sur du tungstène obtenu expérimentalement (trait discontinu en vert) par Ogordnikova et al. [9] après chargements des éprouvettes de tungstène par voie plasma. Les résultats

numériques (trait plein en bleu) sont obtenus à l'aide des paramètres matériau et de diffusion recommandés pour le tungstène [13, 17], en utilisant comme coefficient de diffusion thermique $5,7 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ [14].

On note qu'avec les trois pièges modélisés, les simulations permettent de reproduire les résultats expérimentaux. Les deux premiers pièges sont des pièges intrinsèques du matériau, d'énergies 0,87 et 1,0 eV et de densité constante dans le matériau. Le troisième type correspond à des pièges créés par le bombardement plasma avec une énergie de 1,55 eV et une densité qui varie dans le temps et l'espace.

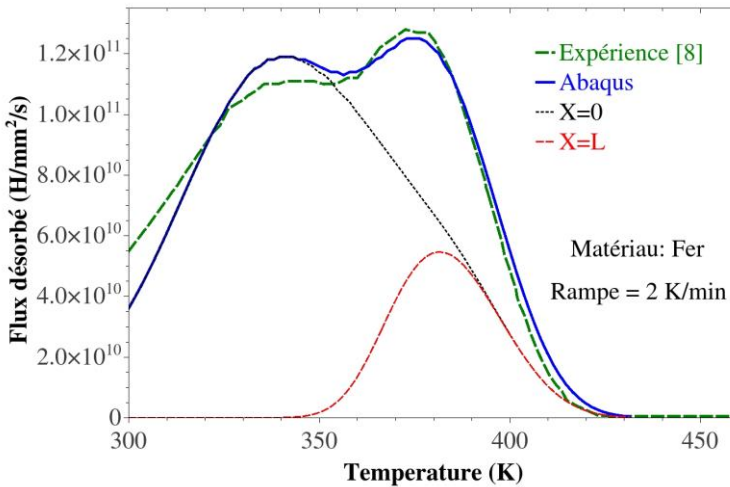


Figure 2. Comparaison entre les résultats du spectre TDS expérimental (courbe verte) et les résultats obtenus avec Abaqus (courbe bleu)

Les résultats expérimentaux obtenus par Hurley et al. [8] pour une TDS d'hydrogène sur du fer sont illustrés sur la Figure 2 (trait pointillé vert) sur une éprouvette de fer de longueur ($L=2 \text{ mm}$) après chargement par pression d'hydrogène (la concentration à la surface de l'échantillon vaut $9,0 \times 10^{19} \text{ atomes/m}^3$). Les auteurs publient également les paramètres à utiliser lors des simulations numériques et le coefficient de diffusion thermique du fer considéré pour cette étude a été imposé à $1,9 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ (à $T=298\text{K}$) [15].

La simulation numérique (en trait plein bleu) permet d'expliquer la présence de deux pics sur la TDS malgré la prise en compte d'un seul piège (avec une énergie de piégeage égale à 0,556 eV et une densité de pièges constante $2,0 \times 10^{15} \text{ piège/m}^3$). Le premier pic correspond à la désorption de la face exposée ($X=0$) et le second à la face opposée ($X=L$). D'une manière générale, l'association des pics aux types de pièges doit donc être prudente.

Pour reproduire correctement les résultats expérimentaux, une attention particulière a été portée sur le début de la rampe de température de la TDS (un décalage de 1000s par rapport aux travaux de Hurley et al. [8] a été imposée pour faire coïncider la rampe imposée numériquement et celle expérimentale).

Ces confrontations avec des résultats de TDS montrent que le couplage diffusion/piégeage de l'hydrogène avec les champs thermiques a été implémenté avec succès dans Abaqus. Puisque la longueur des échantillons est faible (~mm) des résultats similaires peuvent être obtenus en considérant les champs thermiques à leurs états d'équilibre, c'est-à-dire en faisant varier uniformément la température avec le temps dans l'ensemble du matériau.

Application 2D pour l'inventaire d'hydrogène

Le modèle est appliqué ici dans le but de prédire la rétention d'hydrogène en surface d'un composant du futur tokamak d'ITER. La *Figure 3* illustre le domaine de simulation représentant une partie du DFW (*Diagnostic First Wall* ici le *upper port plug*) composé d'acier inoxydable 316L. L'arc de cercle correspond à un quart de tuyau du système de refroidissement (eau) porté à la température T_{eau} et avec une condition de flux nul d'hydrogène. Sur la surface exposée (à droite) la température est T_{surface} , le flux d'hydrogène est nul car l'implantation est volumique (correspondant à la pénétration volumique du bombardement ionique H^+). Les autres faces ont des conditions de symétrie.

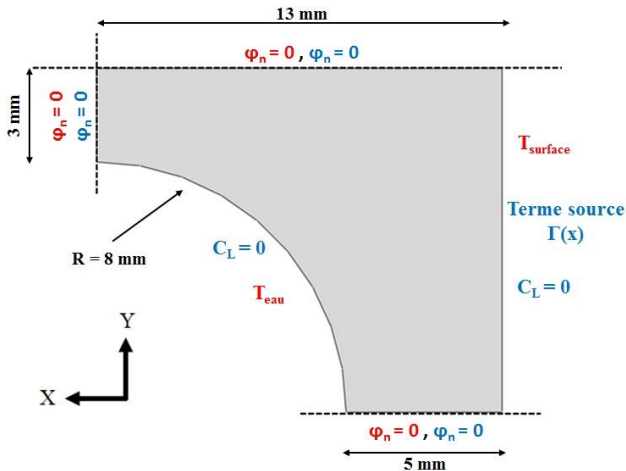


Figure 3. Géométrie et conditions aux limites

Le scénario de chargement thermique et d'hydrogène de 24 heures considéré est reporté sur la *Figure 4* (inspiré du scénario du *Research Plan* d'ITER)

[16]. On impose 13 impulsions ioniques d'une durée de 25 secondes (étape 2) pendant lesquelles le terme source, T_{surface} (en rouge) et T_{eau} (en bleu) sont maximaux. Durant les périodes d'attente (étape 4), aucun H n'est implanté et la température est considérée à 343 K sur les deux surfaces. Entre exposition et périodes d'attente, on suppose des variations linéaires d'implantation de H et de température (étapes 1 et 3). Après les impulsions, une période d'attente de 8h est imposée avec les mêmes conditions que l'étape 4.

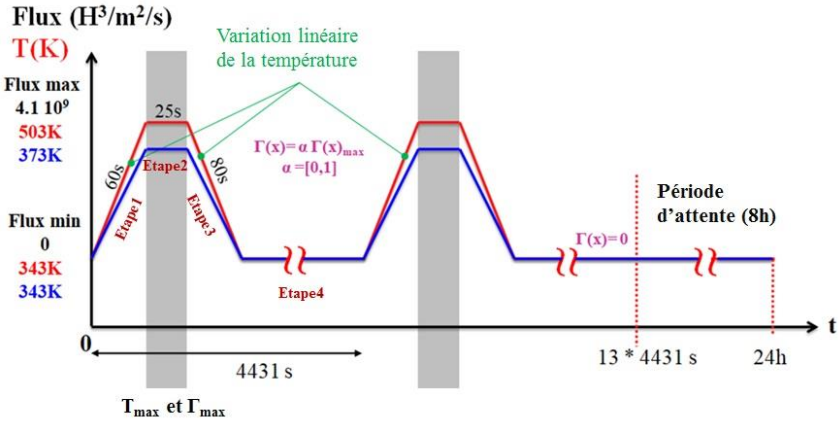


Figure 4. Cycle de 24h du scénario simulé

Seul un piège est pris en compte avec un coefficient de diffusion variable avec la température [16]. Le coefficient de diffusion thermique D_T considéré est pris constant $4,8 \times 10^{-6}$ (m²/s) (car la variation dans la plage de température considérée est inférieure à 10%).

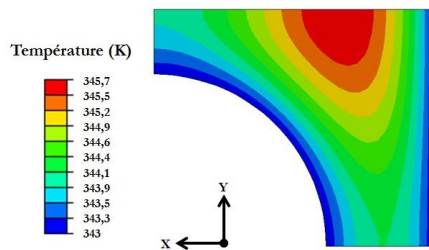
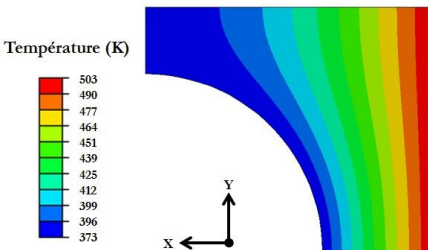


Figure 5. Champs de température obtenus pendant l'étape 2 du chargement (à $t=12,5s$)

Figure 6. Champs de température obtenus à la fin de l'étape 3 (à $t=80s$)

Sur les Figure 5 et Figure 6 sont respectivement reportés les champs de température obtenus durant la phase d'implantation maximale d'hydrogène durant l'étape 2 (à $t=12,5s$) et à la fin de l'étape 3 ($t=80s$). Durant l'étape 2, la température de la surface exposée et la température des tuyaux d'eau ne

varient pas, ce qui implique que les champs thermiques atteignent rapidement un état d'équilibre. Les températures de la surface exposée et des tuyaux d'eau diminuent linéairement jusqu'à atteindre une température homogène (343K) sur la toute la géométrie à la fin de l'étape 3. Durant cette phase de décroissance, un écart d'environ 3K est observé dans une zone au centre du domaine à cause de l'inertie thermique. Il est clair ici que les champs de diffusion et de piégeage de l'hydrogène ne sont pas modifiés par cet écart. Cela démontre que l'hypothèse d'un calcul de température en supposant des champs thermiques à l'équilibre est suffisante dans cette configuration.

Sur la *Figure 7*, l'évolution de concentration d'hydrogène totale (correspondant à l'intégrale des concentrations diffusive et piégée d'hydrogène) retenue dans la structure est reportée pour 7 cycles de 24h. La concentration d'hydrogène totale augmente rapidement pour chaque impulsion. Tandis que la désorption est observée à chaque fois entre deux impulsions, et pendant la période d'attente de 8h. Le gain d'hydrogène à la fin du premier cycle est de $4,6 \times 10^8$ (H/m). Ce gain diminue au fer et à mesure des cycles à cause de la désorption qui s'effectue sur la face exposée, jusqu'à atteindre un gain de $1,05 \times 10^8$ (H/m) au dernier cycle.

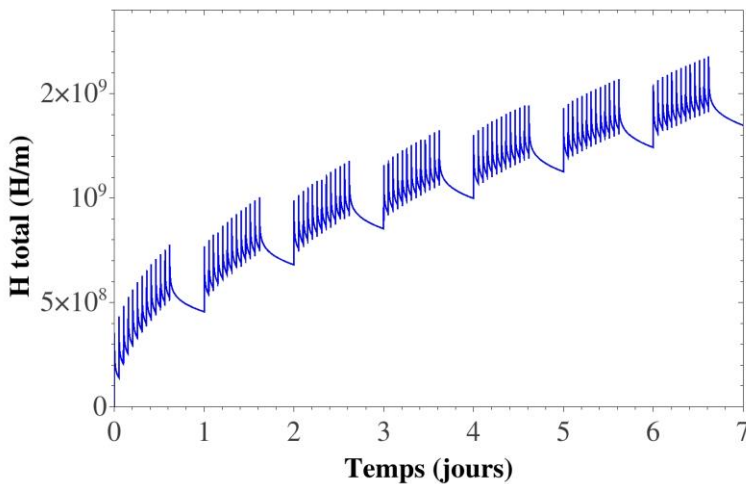


Figure 7. Inventaire hydrogène après 7 cycles de 24h

Conclusion

Grâce à l'ajout d'un module de résolution thermique, le modèle éléments finis développé est désormais capable de résoudre des problèmes de diffusion et piégeage transitoire de l'hydrogène couplé avec les champs

thermiques, ouvrant de nouvelles potentialités de couplage avec les champs mécaniques. Le développement d'une UEL et son couplage avec les routines UMAT et UMATH sous Abaqus ont été nécessaires. Ce modèle a permis de reproduire des spectres TDS expérimentaux pour deux matériaux différents (fer et tungstène sous chargement sous pression ou plasma). Une première estimation de la rétention d'hydrogène dans un composant d'ITER a été réalisée à l'aide de simulations 2D. Pour les applications présentées, les résultats numériques ont montré que l'apport de la prise en compte des champs thermiques transitoires reste négligeable, mais les outils développés permettent d'envisager des configurations pour lesquelles l'aspect transitoire thermique est important. Ces premiers résultats d'une double diffusion permettent également d'envisager d'autres perspectives, comme la diffusion des pièges (dislocations, lacunes) liée à la température.

Avertissement

Les points de vue et opinions exprimés dans ce document ne reflètent pas nécessairement ceux de l'organisation ITER. ITER est une installation nucléaire de base (INB-174).

Bibliographie

- [1] A. H. M. Krom et al, *J. Mech. Phys. Solids*, **47** (4) 971–92, 1999.
- [2] R. A. Oriani, *Acta metall.* **18** (1) 147–57, 1970.
- [3] Y. Charles et al, *J. Mater. Process. Technol.* **212** (8) 1761–70, 2012.
- [4] Y. Charles et al, *Procedia Structural Integrity* **13** 896–901, 2018.
- [5] Y. Charles et al, *Int. J. Hydrogen Energy* **43** 20336–50, 2017.
- [6] A. McNabb et P. K. Foster, *Trans. Metall. Soc. AIME* **227** 618, 1963.
- [7] S. Benannoune et al, *Int. J. Hydrogen Energy* **43** (18) 9083–93, 2018.
- [8] C. Hurley et al, *Int. J. Hydrogen Energy* **40** (8) 3402–14, 2015.
- [9] Ogorodnikova OV et al, *J. Nucl. Mater.* **313-316** 469-77, 2003.
- [10] Simulia. Abaqus User subroutines reference guide. Dassault Système, 2011.
- [11] G. De Temmerman et al, *Plasma Phys. Contr. Fusion* **60** (4) 044018, 2018.
- [12] E. Vasikaran et al, À paraître dans *Mech. Ind.*, 2019.
- [13] Hodille EA et al, *J. Nucl. Mater.* **238** 970-73, 2015.
- [14] C. Sang et al, *J. Nucl. Mater.* **52** 43003-16, 2012.
- [15] Fulkerson, W et al, *J. Appl. Phys.* **37** (7) 2639-2653, 1966.
- [16] G. De Temmerman, *Communication privée* (2017).
- [17] S. Benannoune et al, *Nucl. Mater. Energy* **19** 42-46, 2019.