

氢扩散与裂纹尖端应力场耦合效应的有限元分析

张显, 国凤林

(上海交通大学 船舶海洋与建筑工程学院, 上海 200240)

摘要: **目的** 研究氢鼓包形成过程中应力诱导下氢原子的扩散聚集行为, 并考虑氢原子扩散聚集后对裂纹尖端区域应力场的影响, 探究裂纹尖端区域氢浓度、氢气压强、应力强度因子随时间的演化历程。**方法** 采用有限元软件 ABAQUS, 通过一个完全耦合分析, 探究氢扩散与裂纹尖端区域应力场相互影响的动态过程。借助于断裂力学中的裂纹扩展判据判定氢鼓包是否会继续向前扩展。**结果** 在应力诱导作用下, 氢原子源源不断地向裂纹尖端高应力区域聚集, 裂纹尖端区域的氢浓度、氢压、应力强度因子随时间呈指数型增长。**结论** 在浓度梯度作用下, 氢原子会向材料内部扩散。氢压引起的应力场会促进氢原子的扩散聚集行为, 且应力场越大, 促进作用越明显, 使得缺陷处的氢浓度不断增大, 氢压也就越来越大。当应力强度因子达到裂纹起裂的临界值时, 就会导致开裂, 形成氢鼓包, 如此循环往复, 直至氢鼓包开裂。

关键词: 氢扩散; 应力诱导扩散; 完全耦合分析; 氢鼓包; 裂纹扩展

中图分类号: TG172 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3660(2018)06-0240-06

DOI: 10.16490/j.cnki.issn.1001-3660.2018.06.034

Finite Element Analysis of Coupling Effect between Hydrogen Diffusion and Stress Field at Crack Tip

ZHANG Xian, GUO Feng-lin

(School of Naval Architecture, Ocean and Civil Engineering, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240, China)

ABSTRACT: The work aims to study the diffusion and aggregation behavior of hydrogen induced by stress during the process of hydrogen blistering formation, with the effect of hydrogen diffusion on the stress field in the crack tip region taken into account. We investigate the evolution of hydrogen concentration, hydrogen pressure and stress intensity factor at the crack tip with time. By using software ABAQUS, the dynamic process of hydrogen diffusion and build-up of stress field at the crack tip, as well as the interaction between hydrogen diffusion and stress concentration are investigated through a fully coupling analysis. Initiation of extension of hydrogen blistering will be determined by crack propagation criterion in fracture mechanics. Under stress induction, hydrogen diffuses towards the vicinity of the crack tip continuously, and hydrogen concentration, hydrogen pressure and stress intensity factor in the regions near crack tip increase exponentially with time. Under the action of concentration gradient, hydrogen diffuses into the interior of material. The stress field induced by hydrogen pressure will promote the diffusion behavior of hydrogen, and the larger the stress field, the more obvious the promoting effect. This makes the hydrogen concentration in the defect increases, and the hydrogen pressure increases as well. When the stress intensity factor reaches the critical value of the crack initiation, the defect will extend and form a hydrogen blister. This process happens again and again

收稿日期: 2017-12-04; 修订日期: 2018-03-25

Received: 2017-12-04; Revised: 2018-03-25

作者简介: 张显 (1991—), 男, 硕士, 主要研究方向为电子封装失效分析、氢扩散。

Biography: ZHANG Xian(1991—), Male, Master, Research focus: failure analysis of electronic packaging and hydrogen diffusion.

通讯作者: 国凤林 (1964—), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为固体力学。

Corresponding author: GUO Feng-lin (1964—), Male, Ph. D., Associate professor, Research focus: solid mechanics.

until cracking of the hydrogen blister.

KEY WORDS: hydrogen diffusion; stress-induced diffusion; fully coupled analysis; hydrogen blistering; crack propagation

国内外许多石化设备出现了氢鼓包腐蚀破坏,使得氢鼓包问题得到了广泛关注。孙磊等^[1]通过检验已发生氢鼓包腐蚀的液化石油气储罐发现,硫化氢超标是产生氢鼓包的主要原因,并简要描述了氢鼓包形成的过程。张其敏等^[2]验证了上述实验的正确性,并指出服役环境和材料特性是导致氢鼓包产生和扩展的主要因素,对氢鼓包的形成条件有了进一步的认识。Tan E 等^[3]通过应力诱导实验得出,夹杂是加速氢鼓包产生的重要原因。张涛等^[4]通过实验分析发现钢中的非金属夹杂会促进氢致裂纹的萌生,充氢后试样发生穿晶断裂。黄亮等^[5]采用一系列手段分析了 Q235B 钢腐蚀开裂失效的宏观和微观行为,发现腐蚀过程中,电化学反应产生的氢原子渗入基体,对基体产生极大的拉应力,导致微裂纹的萌生。Lino M^[6]通过实验发现氢原子在夹杂物和基体的界面处或基体的微孔洞中结合成氢分子,产生很高的氢压,导致微裂纹的产生,这些微裂纹的连接和扩展导致裂纹或氢鼓包的形成。任学冲等^[7]综合分析了产生氢鼓包的纯铁,发现氢原子会向夹杂和基体界面处聚集,并对氢鼓包形核、长大和开裂的过程进行分析,首次提出了完整的氢鼓包形成机理,但未对夹杂促进氢鼓包形成的机理做定量计算分析。Hoshihira T 等^[8]通过 TARG (氚无线发光绘图法和射线自显迹法)研究产生氢鼓包腐蚀的钼,并在实验中发现了原子态氢进入材料后的运动状态及形核过程,总结了氢鼓包的形成机理,并给出了夹杂对氢鼓包作用的具体过程。张恒等^[9]系统阐述了氢鼓包的产生、扩展机理及防治措施,对氢鼓包形成机理、破坏形式有了深刻的理解。

蒋文春等^[10]采用有限元软件 ABAQUS 对氢向 MnS 夹杂与基体界面扩散聚集行为进行模拟,预测了产生鼓泡的临界质量摩尔浓度、压力以及产生断裂失效的时间。胡军等^[11]对含氢鼓包的液化气罐进行仿真分析,提出了一种基于 J 积分的安全评估方法。温吉利等^[12]模拟了氢在 2.25Cr-1Mo 钢中的扩散过程,系统地研究了加氢与裂纹扩展交互环境下的氢扩散规律,通过分析发现应力的存在对氢扩散具有促进作用。ZHANG S 等^[13]利用有限元法研究了氢在含夹杂或裂纹的基体材料中的扩散行为,计算了裂纹中不同氢气压力下稳态氢浓度分布和应力场,研究了应力场对氢扩散的影响。MENG G Z 等^[13]发现加工制造工艺中的残余应力会影响氢原子的渗透行为。

上述研究均只考虑应力场对氢扩散的单向影响或氢气压力在缺陷/裂纹处引起的应力集中和奇异,

未考虑氢原子扩散聚集后氢气压力的改变对裂纹尖端应力场的影响,也未研究氢扩散与氢鼓包形成演化相互影响的动态过程。

本文结合断裂力学方法,充分考虑了氢扩散和氢气压力引起的应力场的耦合作用,将氢鼓包的扩展视为裂纹不断向前扩展的过程,借助于裂纹扩展判据判定鼓泡腔体是否会继续向前扩展。采用有限元软件 ABAQUS 对氢扩散与裂纹尖端应力场进行耦合分析,探究氢扩散与裂纹尖端应力场相互影响的动态过程及氢浓度、氢压的演化历程。利用应力强度因子判定氢鼓包扩展趋势,对氢鼓包形成和演化的过程进行定量分析和预测。

1 氢扩散基本理论

根据扩散阶段质量守恒原理,氢扩散控制方程的积分形式为^[15]:

$$\int_V \frac{dc}{dt} dV + \int_S n \cdot J dS = 0 \quad (1)$$

其微分方程形式为:

$$\frac{dc}{dt} + \nabla \cdot J = 0 \quad (2)$$

根据传质理论,在非均匀介质中,由化学位梯度引起的氢扩散的本构方程为^[16]:

$$J = -SD \cdot \left[\frac{\partial \varphi}{\partial x} + k_s \frac{\partial}{\partial x} [\ln(\theta - \theta_z)] + k_\sigma \frac{\partial \sigma}{\partial x} \right] \quad (3)$$

式中: J 为扩散通量 ($\text{kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$); D 为扩散系数 (m^2/s); c 为浓度 (kg/m^3); φ 为氢活度, $\varphi=c/S$; S 为溶解度 (kg/m^3); k_s 为由温度梯度驱动扩散的“Score”效应系数,表征温度梯度对氢扩散的诱导作用; θ 为温度, $\theta=323 \text{ K}$; θ_z 为绝对零度 ($-273 \text{ }^\circ\text{C}$); k_σ 为由应力梯度驱动扩散的等效应力梯度系数,表征应力梯度对氢扩散的诱导作用 (m^2/N); σ 为等价压应力 (Pa), $\sigma = -(\sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz})/3$ 。

当不存在温度梯度时,公式(3)简化得到:

$$J = -SD \cdot \left(\frac{\partial \varphi}{\partial x} + k_\sigma \frac{\partial \sigma}{\partial x} \right) \quad (4)$$

其中,应力梯度系数的表达式为:

$$k_\sigma = \frac{c}{S} \cdot \frac{V_H}{R(\theta - \theta_z)} \quad (5)$$

为便于分析计算,本文将材料假设为各向同性,将氢扩散问题简化为二维扩散模型,将公式(4)和(5)代入公式(2)中得到二维氢扩散问题的微分方程。

$$\frac{\partial c}{\partial t} - D \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) - \frac{DV_H}{R(\theta - \theta_z)} \left[\frac{\partial c}{\partial x} \cdot \frac{\partial \sigma}{\partial x} + \frac{\partial c}{\partial y} \cdot \frac{\partial \sigma}{\partial y} + \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \sigma}{\partial y^2} \right) \cdot c \right] = 0 \quad (6)$$

式中: R 为气体常数, 一般取 $8.3 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$; V_H 为氢在钢中的偏摩尔体积, Hirth 建议取 $V_H = 2.0 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}^{[16]}$ 。氢鼓包内氢气压强与溶解在基体金属中的氢原子符合 Sieverts 定律, Kazumaru Kohira 氢压计算公式为^[18]:

$$c = 63 \times \sqrt{p} \exp \left(\frac{0.0715p - 3460}{T} \right) \quad (7)$$

式中: c 为氢浓度, $c = 100 \text{ g}/\text{cm}^3$; T 为热力学温度 (K); p 为微孔隙中的氢压强度。

2 氢扩散与应力场耦合分析

2.1 有限元分析流程

氢扩散与应力场耦合分析流程见图 1, 详细步骤如下:

- 1) 首先假设初始氢浓度为 c_0 , 通过公式(7)计算氢压。
- 2) 根据计算得到的氢压进行应力分析, 计算裂纹尖端区域的应力场和应力强度因子。
- 3) 将应力场作为氢扩散分析的预定义场, 在上一扩散分析结果的基础上, 采用重启动分析技术,

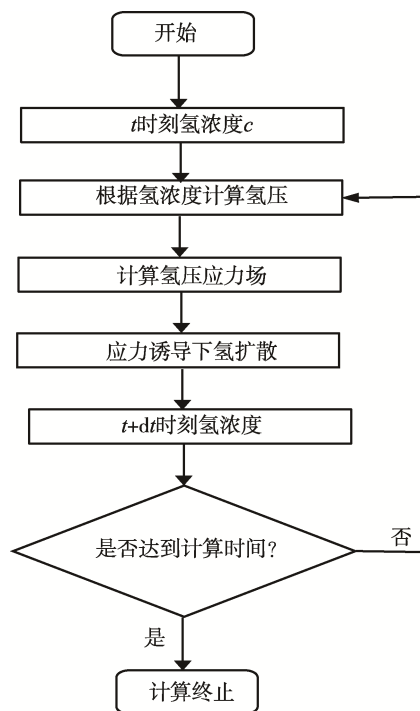


图 1 氢扩散与应力场耦合分析流程

Fig.1 Flow chart of Hydrogen diffusion and stress field coupling analysis

进行应力诱导下的氢原子扩散分析, 计算得到模型各点的氢浓度。

4) 每个扩散分析步结束后, 更新氢压进行下一迭代步的应力分析, 应力分析结果又用于新扩散步的计算, 如此反复, 直到达到计算时间完成计算。

2.2 几何模型及简化条件

为便于分析计算, 将氢扩散问题简化为二维模型。考虑到氢原子在基体中由高浓度向低浓度区域扩散, 并且在不同模型中的扩散行为类似, 不失一般性, 现取扩散基体区域为 $30 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$, 中间存在长度为 10 mm 的裂纹平面模型作为研究对象, 如图 2 所示。本研究主要考虑氢扩散与应力场耦合分析, 因此假定算例模型各个位置的温度一致且保持恒定。

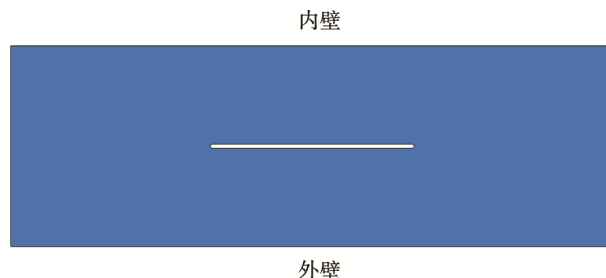


图 2 耦合分析中几何模型

Fig.2 Geometric model in coupled analysis

2.3 材料参数及边界条件

材料参数为: 弹性模量 $E = 200 \text{ GPa}$, 泊松比 $\nu = 0.3$, 扩散系数 $D = 2.32 \times 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$, 温度 $T = 323 \text{ K}$, 气体常数 $R = 8.3 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$, 偏摩尔体积 $V_H = 2.0 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{mol}$, 初始氢浓度 $c_0 = 0.0196\%$ 。使用 ABAQUS 软件进行氢扩散分析时, 须注意边界条件施加的氢浓度用氢活度 φ (Normalized concentration) 来表征, 计算公式为 $\varphi = c/S$, 其中 c 为氢浓度, S 为溶解度。氢扩散分析中模型内表面与含硫化氢溶液接触, 氢原子浓度较大, 取浓度 0.0100% 作为内壁边界条件, 外壁边界条件假定为 0。应力场分析中, 模型左右两端为固支边界, 氢气压强作用于裂纹表面, 如图 3 所示。

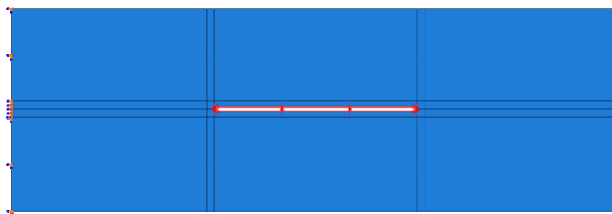


图 3 应力分析中载荷及边界条件

Fig.3 Load and boundary conditions in stress analysis

划分网格时, 氢扩散分析中选用 DC2D4 单元, 应力场分析中选用 CPS4 单元, 在裂纹尖端附近网格局部加密, 划分网格后模型如图 4 所示。

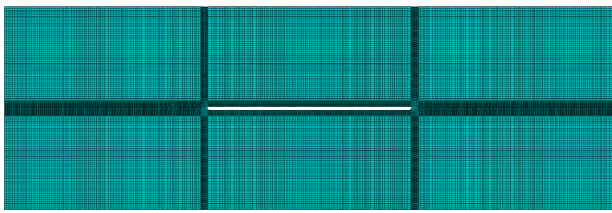


图 4 耦合分析中网格划分
Fig.4 Meshing in coupled analysis

3 结果与分析

3.1 氢扩散分析

由图 5—7 可以看出, 在浓度梯度和应力诱导作用下, 氢原子源源不断地向裂纹尖端区域扩散聚集, 导致裂纹尖端区域的氢浓度不断增大。由理论公式(7)可以推断出, 裂纹尖端区域的氢浓度不断增大时, 将会引起裂纹内部氢压不断增大, 驱动裂纹扩展。

考虑到在浓度梯度和应力诱导作用下, 氢原子源



图 5 无应力场作用时氢浓度云图
Fig.5 Contour plot of hydrogen concentration without stress field

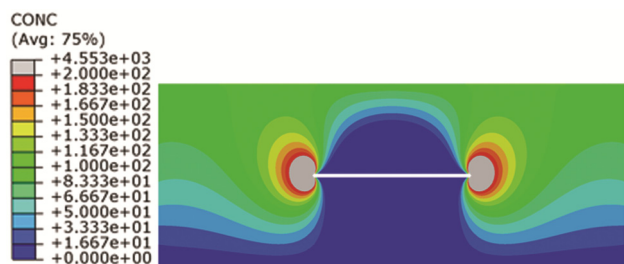


图 6 $t=70\,000\text{ s}$ 时应力诱导下氢浓度云图
Fig.6 Contour plot of hydrogen concentration induced by stress at 70 000 s

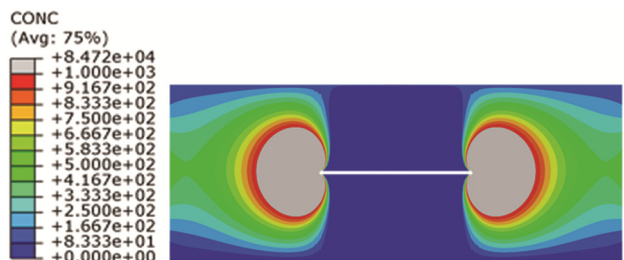


图 7 $t=80\,000\text{ s}$ 时应力诱导下氢扩散云图
Fig.7 Contour plot of hydrogen concentration induced by stress at 80 000 s

源不断地向裂纹尖端区域扩散聚集, 取裂纹尖端区域最大氢浓度值来描述氢浓度随时间的变化趋势。由图 8 可以看出, 随着时间的推移, 氢浓度越来越大, 呈指数型增长。前期由于裂纹内部氢压较小, 引起的应力场也较小, 氢浓度增长缓慢。后期随着裂纹内部氢压的增大, 氢压引起的应力场也增大, 导致氢浓度增长迅速。

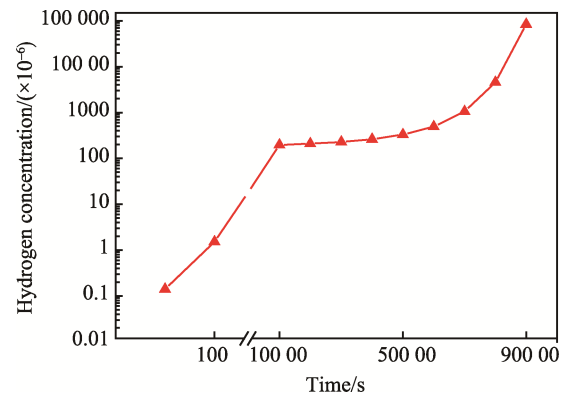


图 8 裂纹尖端氢浓度随时间变化曲线
Fig.8 Variation of hydrogen concentration with time at the crack tip

3.2 应力分析

由图 9—10 可以看出, 随着时间的推移, 氢压增大, 裂纹尖端的应力越来越大。由公式(4)可以推断出, 当裂纹尖端区域的应力比较大时, 将直接导致裂纹尖端区域的氢浓度增大, 在裂纹界面处产生更大的氢压, 驱动裂纹扩展。

由图 11 可以看出, 随着时间的推移, 氢压越来越大, 呈指数型增长。前期由于裂纹内部的氢浓度较

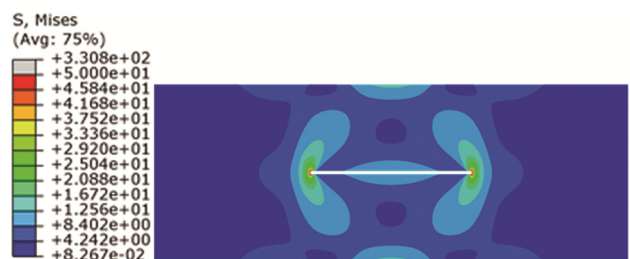


图 9 $t=70\,000\text{ s}$ 时裂纹尖端应力分布
Fig.9 Stress distribution at the crack tip at 70 000 s

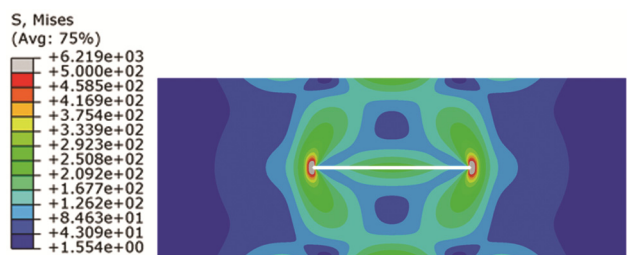


图 10 $t=80\,000\text{ s}$ 时裂纹尖端应力分布
Fig.10 Stress distribution at the crack tip at 80 000 s

小, 氢压增长缓慢。后期由于裂纹内部氢浓度迅速增大, 导致氢压增长迅速。

图 12 给出了应力强度因子由有限元计算得到的值和由经验公式得到值的对比, 其中经验公式取自应力强度因子手册^[20]。由图 12 可以看出, 随着时间的推移, 应力强度因子越来越大, 呈指数型增长。前期由于裂纹内部氢浓度较小, 氢压增长缓慢, 应力强度因子也增长缓慢。后期由于裂纹内部氢浓度迅速增大, 导致氢压增长迅速, 应力强度因子也迅速增大。当应力强度因子达到裂纹起裂的临界值时, 就会导致裂纹开始扩展^[21]。

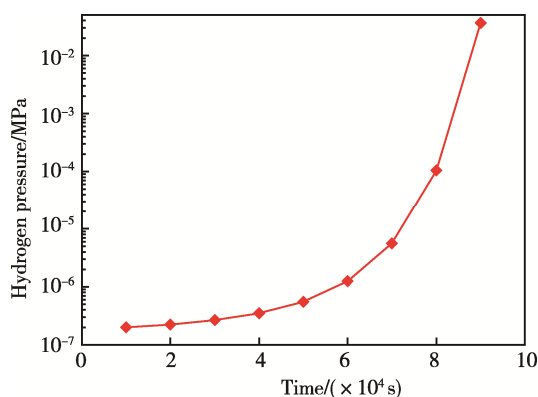


图 11 氢压随时间的变化

Fig.11 Variation of hydrogen pressure with time

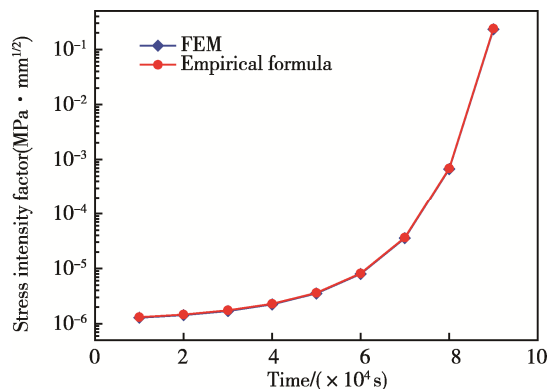


图 12 应力强度因子随时间的变化

Fig.12 Variation of stress intensity factor with time

4 结论

1) 在浓度梯度作用下, 氢原子会向基体内部扩散。氢鼓包内部氢压引起的应力场会促进氢原子的扩散聚集行为, 且应力场越大, 促进作用越明显。

2) 氢压引起的局部应力梯度将会使周围的氢原子源源不断地向高应力区域扩散聚集, 使缺陷处的氢浓度不断增大, 氢压也就越来越大。当应力强度因子达到裂纹起裂的临界值时, 就会导致裂纹开始扩展, 形成氢鼓包, 如此循环往复, 直至氢鼓包失稳扩展导致结构破坏。

3) 利用 ABAQUS 软件实现了氢扩散与应力场完全耦合分析, 探究应力场与氢扩散相互影响的动态过程, 对氢鼓包的形成机理有了更深刻的理解, 对氢鼓包的预测和防护具有参考价值。

参考文献:

- [1] 孙磊, 刘夫民. 液化石油气储罐 H₂S 腐蚀实例浅析[J]. 科技视界, 2012(16): 55-56.
SUN Lei, LIU Fu-min. Analysis of H₂S Corrosion of Liquefied Petroleum Gas Storage Tank[J]. Science and Technology Vision, 2012(16): 55-56.
- [2] 张其敏, 徐春碧, 陈美宝. 在役输气管道鼓泡分层缺陷机理分析[J]. 油气田地面工程, 2013(4): 34-35.
ZHANG Qi-min, XU Chun-bi, CHEN Mei-bao. Mechanism Analysis of Bubbling Delamination in In-service Gas Transmission Pipeline[J]. Oil and Gas Field Ground Engineering, 2013(4): 34-35.
- [3] TAN E, TARAKCILAR A R, DISPINAR D. Blistering Problems Observed in Strain Induced Melt Activated Aluminium Alloys[J]. Transactions of the Indian Institute of Metals, 2011, 64(6): 555-563.
- [4] 张涛, 王长朋, 刘静. X80 管线钢在酸性环境下的氢致开裂行为研究[J]. 表面技术, 2014(6): 48-52.
ZHANG Tao, WANG Chang-peng, LIU Jing. Study on Hydrogen Induced Cracking Behavior of X80 Pipeline Steel in Acidic Environment[J]. Surface Technology, 2014(6): 48-52.
- [5] 黄亮, 刘智勇, 杜翠薇, 等. Q235B 钢含硫污水罐的腐蚀开裂失效分析[J]. 表面技术, 2015(3): 52-56.
HUANG Liang, LIU Zhi-yong, DU Cui-wei, et al. Failure Analysis of Corrosion Cracking of Sulfur Containing Water Tank in Q235 B Steel[J]. Surface Technology, 2015(3): 52-56.
- [6] IINO M. The Extension of Hydrogen Blister-crack Array in Linepipesteels[J]. Metallurgical Transactions A, 1978, 9(11): 1581-1590.
- [7] 任学冲, 单广斌, 褚武扬, 等. 氢鼓泡的形核、长大和开裂[J]. 科学通报, 2005, 50(16): 1689-1692.
REN Xue-chong, SHAN Guang-bin, CHU Wu-yang, et al. Initiating, Growing and Cracking of Hydrogen Blisters[J]. Chinese Science Bulletin, 2005, 50(16): 1689-1692.
- [8] HOSHIHARA T, OTSUKA T, TANABE T. A Study of Hydrogen Blistering Mechanism for Molybdenum by Tritium Radio-luminography[J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, 390(1): 1029-1031.
- [9] 张恒, 曹红蓓. 氢鼓包产生机理及防治措施的研究综述[J]. 制造业自动化, 2014(18): 23-25.
ZHANG Heng, CAO Hong-bei. Review on the Mechanism and Prevention Measures of Hydrogen Bulge Formation[J]. Manufacturing Automation, 2014(18): 23-25.

- [10] 蒋文春, 巩建鸣, 唐建群, 等. 湿 H_2S 环境下 16MnR 钢氢鼓泡的有限元模拟[J]. 吉林大学学报(工), 2008, 38(1): 61-65.
JIANG Wen-chun, GONG Jian-ming, TANG Jian-qun, et al. Finite Element Simulation of Hydrogen Bubbling in 16MnR Steel under Wet H_2S Environment[J]. Journal of Jilin University, 2008, 38(1): 61-65.
- [11] 胡军, 刘菲, 张早校, 等. 利用 Abaqus 的含氢鼓包缺陷液化气罐安全分析[J]. 西安交通大学学报, 2010, 44(9): 38-42.
HU Jun, LIU Fei, ZHANG Zao-xiao, et al. Safety Analysis of Liquefied Gas Tank with Hydrogen Bulge Defect Using Abaqus[J]. Journal of Xi'an Jiaotong University, 2010, 44(9): 38-42.
- [12] 温吉利, 华丽, 徐宏, 等. 2.25Cr-1Mo 钢氢致裂纹扩展行为研究[J]. 腐蚀与防护, 2008, 29(3): 19-22.
WEN Ji-li, HUA Li, XU Hong, et al. Study on Hydrogen Induced Crack Propagation Behavior of 2.25Cr-1Mo Steel[J]. Corrosion and Protection, 2008, 29(3): 19-22.
- [13] ZHANG S, WANG H, HOU F. Influence of the Types of Stress on Hydrogen Induced Damage By Simulating Hydrogen Diffusion[C]//International Conference on Materials, Environmental and Biological Engineering. Shanghai: IEEE Transactions on Knowledge and Data Engineering, 2015.
- [14] MENG G Z, FU J L, SUN F L, et al. Study on Blister of the Coating on Solid Cantilevers of Hydraulic Supports for Coal Mining[J]. Science China, 2010, 53(12): 3183-3188.
- [15] CRANK J. The Mathematics of Diffusion[M]. Oxford: Clarendon Press, 1956.
- [16] SOFRONIS P, MCMECKING R. Numerical Analysis of Hydrogen Transport Near a Blunting Crack Tip[J]. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1989, 37(3): 317-350.
- [17] HIRTH J P. Hydrogen Embrittlement Property of a 1700 MPa-class Ultrahigh-strength Tempered Martensitic Steel[J]. Metall Trans, 1980, 11A: 861.
- [18] KOHIRA K, YATAKE T, YURIOKA N. A Numerical Analysis of the Diffusion and Trapping of Hydrogen in Steels and Its Application to Weldments[J]. Journal of the Japan Welding Society, 1974, 43(9): 921-930.
- [19] 范俊锴, 杜凤山, 黄华贵, 等. 钢中微孔隙氢压强度与氢浓度[J]. 钢铁, 2013, 48(10): 70-75.
FAN Jun-kai, DU Feng-shan, HUANG Hua-gui, et al. Hydrogen Pressure and Hydrogen Concentration in Microporous Gap in Steel[J]. Steel, 2013, 48(10): 70-75.
- [20] 中国航空研究院. 应力强度因子手册[M]. 北京: 科学出版社, 1993: 160-165.
Chinese Aeronautical Establishment. Handbook of Stress Intensity Factors [M]. Beijing: Science Publishing, 1993: 160-165.
- [21] SUN C T, JIN Z H. Fracture Mechanics[M]. Boston: Academic Press, 2012: 20.