# Caractérisations expérimentales et numériques de la dégradation par choc des réservoirs d'hydrogène à haute pression

#### T-T. PHAM, D. HALM, J-C. GRANDIDIER

Laboratoire de Mécanique et de Physique des matériaux (LMPM), ENSMA, 1av. Clément Ader 86961 FUTUROSCOPE

# Résumé :

Cette étude vise à développer des connaissances sur le comportement d'un réservoir à hydrogène en composite bobiné (fibre de carbone et résine époxy) à haute pression ayant subi à des chocs en service, c'està-dire à étudier les endommagements générés ainsi que leur évolution et leurs conséquences en service. On a développé une approche de l'évolution des dommages induits par impact de type endommagement/propagation/rupture. Un modèle d'endommagement simule la dégradation progressive du matériau composite constituant le réservoir d'hydrogène. Le principe du modèle est de prédire l'endommagement dans chaque empilement unidirectionnel et de prendre en compte son effet sur la rupture macroscopique de la structure. La validation du modèle d'endommagement se base sur les résultats d'essais sur des éprouvettes de composite bobinés entaillées. Une fois validé sur éprouvette, le modèle est appliqué au comportement de réservoirs complets, avec différentes structures de composites. Des observations par micrographie de réservoirs impactés permettent d'identifier le type d'endommagement induit par choc. Cette morphologie de défauts est directement introduite dans le maillage éléments finis du réservoir. On note que la présence du défaut provoque une diminution de la pression d'éclatement d'environ 30%

## **Abstract :**

This study aims to develop knowledge about the behavior of a hydrogen tank wound composite (carbon fiber and epoxy resin) subjected to shocks in service at high pressure, that means to study the damage generated, their evolution and their consequences in service. We have developed an approach to the evolution of damage caused by impact type damage / propagation / rupture. A damage model simulates the gradual degradation of the composite material forming the hydrogen tank. The principle of the model is to predict the damage in each stack unidirectional and to take into account its effect on the macroscopic failure of the structure. Validation of the damage model is based on the results of tests on specimens notched composite wound. Once validated test, the model is applied to the behavior of tanks complete with different structures of composites. Observations micrograph reservoirs impacted identify the type of damage induced by shock. This morphology of the defects is directly introduced in the finite element mesh of the reservoir. We note that the presence of the fault causes a decrease in the burst pressure of approximately 30%

#### Mots clefs : réservoir d'hydrogène, simulation numérique, modèle d'endommagement

# **1** Introduction

L'emploi des matériaux composites dans les stockages d'hydrogène amène les concepteurs à devoir maîtriser les phénomènes d'initiation et de propagation des défauts pouvant avoir une incidence sur leur tenue résiduelle, et donc sur leur certification. Des campagnes d'expérimentations sont réalisées dans ce but, leurs dépouillements nécessitent des modèles numériques basés sur les éléments finis (EF) pour représenter le comportement des stratifiés composites. Ces modèles de comportement intègrent les phénomènes d'endommagement et permettent de prédire la rupture. En revanche, la prévision des conséquences d'un impact sur la tenue résiduelle d'un réservoir bobiné n'a pas encore été abordée, alors que c'est une question très importante pour assurer la durabilité en conditions de service. Divers auteurs ont utilisé différents modèles de progression d'endommagement pendant l'impact des composites stratifiés dédiés aux applications aéronautiques. Toutefois, leur application n'est valable que pour les structures composites stratifiés minces, à fibres continues de carbone et de matrices polymères fragiles [1] [2] [3] [4]. Récemment, ces approches ont été étendues aux composites épais [5], mais la question reste ouverte pour les composites bobinés qui présentent une microstructures spécifique.

Dans ce contexte des composites bobinés, peu (voire pas) d'études se sont penchées sur la tolérance aux dommages, et notre approche aborde justement la modélisation de l'évolution des dommages induits par un impact. Un modèle d'endommagement est présenté, il appréhende la dégradation progressive du matériau composite choqué constituant un réservoir d'hydrogène. Le principe est de décrire les dommages générés par le choc par un modèle numérique et de simuler sur cette géométrique spécifique l'évolution de l'endommagement. Chaque empilement unidirectionnel est modélisé en 3D et la rupture macroscopique de la structure est appréhendée par la croissance rapide des dimensions géométriques. Pour décrire la ruine, une approche de type « analyse progressive de la rupture » a été utilisée. Ces travaux s'appuient sur ceux développés dans le cadre de la thèse de Gentilleau [6] qui a abordé le comportement thermomécanique du réservoir. A l'image de ces développements, on a pris le parti de n'utiliser que les outils les plus simples possibles proposés dans la version standard d'Abaqus (pas de codage du comportement dans une UMAT) dans un souci de limitation du temps de calcul, indispensable sur des structures de grandes tailles comme les réservoirs bobinés.

#### 2 Principe du modèle d'endommagement et de rupture

#### 2.1 Loi de comportement

Les essais dans le cadre du projet H2E ont montré les différences de comportement dans les différentes directions du matériau composite bobiné : élastique linéaire dans les directions 0° (direction des fibres) et 90° (direction perpendiculaire aux fibres), élasto - plastique en cisaillement [6]. Cette anisotropie de comportement est introduite en mettant en place un modèle basé sur un comportement plastique tabulé (déformation plastique – contrainte) et se basant sur un critère de Hill  $f(\sigma)-1=0$  avec :

$$f(\sigma) = \sqrt{F(\sigma_{22} - \sigma_{33})^{2} + G(\sigma_{33} - \sigma_{11})^{2} + H(\sigma_{11} - \sigma_{22})^{2} + 2L\sigma_{23}^{2} + 2M\sigma_{31}^{2} + 2N\sigma_{12}^{2}}$$

$$F = \frac{(\sigma^{0})^{2}}{2} \left(\frac{1}{\sigma_{22}^{2}} + \frac{1}{\sigma_{33}^{2}} - \frac{1}{\sigma_{11}^{2}}\right) = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{22}^{2}} + \frac{1}{R_{33}^{2}} - \frac{1}{R_{11}^{2}}\right) \qquad L = \frac{3}{2} \left(\frac{\tau^{0}}{\sigma_{23}^{2}}\right)^{2} = \frac{3}{2R_{23}^{2}}$$

$$G = \frac{(\sigma^{0})^{2}}{2} \left(\frac{1}{\sigma_{33}^{2}} + \frac{1}{\sigma_{11}^{2}} - \frac{1}{\sigma_{22}^{2}}\right) = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{33}^{2}} + \frac{1}{R_{11}^{2}} - \frac{1}{R_{22}^{2}}\right) \qquad M = \frac{3}{2} \left(\frac{\tau^{0}}{\sigma_{13}^{2}}\right)^{2} = \frac{3}{2R_{13}^{2}}$$

$$H = \frac{(\sigma^{0})^{2}}{2} \left(\frac{1}{\sigma_{11}^{2}} + \frac{1}{\sigma_{22}^{2}} - \frac{1}{\sigma_{33}^{2}}\right) = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_{11}^{2}} + \frac{1}{R_{22}^{2}} - \frac{1}{R_{33}^{2}}\right) \qquad N = \frac{3}{2} \left(\frac{\tau^{0}}{\sigma_{12}^{2}}\right)^{2} = \frac{3}{2R_{13}^{2}}$$

$$(1)$$

Les coefficients *F*, *G*, *H*, *L*, *M* et *N* (1) permettent de prendre en compte l'anisotropie de la limite d'élasticité. Le paramètre  $\overline{\sigma}_{ij}$  est la valeur de limite d'élasticité mesurée lorsque  $\sigma_{ij}$  est la seule composante non nulle appliquée,  $\sigma^0$  est une contrainte de référence définie par l'utilisateur,  $R_{11}, R_{22}$ ,  $R_{33}, R_{12}, R_{13}, R_{23}$  sont les ratios des limites d'élasticité définis respectivement par  $\frac{\overline{\sigma}_{11}}{\sigma^0}, \frac{\overline{\sigma}_{22}}{\sigma^0}, \frac{\overline{\sigma}_{33}}{\sigma^0}, \frac{\overline{\sigma}_{12}}{\tau^0}, \frac{\overline{\sigma}_{13}}{\tau^0}$  et  $\frac{\overline{\sigma}_{23}}{\tau^0}$  avec  $\tau^0 = \frac{\sigma^0}{\sqrt{3}}$ .

✓ Appréhension du comportement du composite dans les directions  $0^\circ$  et  $90^\circ$ 

En choisissant  $R_{11}$ ,  $R_{22}$  et  $R_{33}$  infinis, les coefficients *F*, *G*, et *H* s'annulent. Le comportement reste donc élastique linéaire dans les directions d'orthotropie. La fonction seuil ne contient alors que des termes de cisaillement. Comme les contraintes  $\sigma_{11}$ ,  $\sigma_{22}$  et  $\sigma_{33}$  n'apparaissent plus dans cette fonction de seuil, les limites d'élasticité dans ces directions sont infinies..

✓ Appréhension du comportement du composite dans les directions ±45° On choisit les potentiels  $R_{12} = R_{13} = R_{23} = \sqrt{3}$  pour avoir une loi élasto - plastique en cisaillement identique dans les trois directions. La fonction de seuil de Hill ne dépend au final que des contraintes de cisaillement. L'écrouissage est identifié sur les courbes d'essai de traction sur les échantillons à ±45°

✓ Appréhension de l'endommagement du composite dans les directions ±45°



FIG. 1 – Courbes contrainte - déformations des éprouvettes orientés ±45° au cours des essais de traction cyclique à différentes températures [6]

Pour rappel, les essais de traction sur éprouvettes à  $\pm 45^{\circ}$  (figure 1) indiquent un comportement plastique en cisaillement fortement dépendent de la température. Au début du chargement, le matériau se déforme linéairement. A partir d'un seuil d' "élasticité", son comportement devient non linéaire jusqu'à la rupture. On note également une perte de rigidité de cisaillement au cours des décharges. Cette dégradation augmente en lien avec la déformation irréversible. Pour reproduire au mieux ce comportement, on relie alors la perte de rigidité à la déformation plastique cumulée définie par la courbe d'écrouissage (PEEQ dans Abaqus). Cette loi de comportement est modélisée dans Abaqus par l'utilisation d'une subroutine USDFLD (userfield) qui permet d'indexer un (ou plusieurs) champs (« field ») en fonction des différentes variables du modèle. Dans notre cas, ce champ ou « field » va contenir la déformation plastique équivalente qui est tout simplement utilisée comme indicateur d'endommagement. Les modules de cisaillement sont alors explicités en fonction de la déformation plastique cumulée PEEQ de façon tabulée. C'est une façon très simpliste de construire le modèle, mais elle évite d'intégrer des lois d'évolutions à chaque point de Gauss et de construire des matrices tangentes complexes.

### 2.2 Introduction de la progressivité de la rupture finale

Associée à cette loi de comportement de type plasticité anisotrope pour le composite, on utilise un critère de rupture du matériau composite qui se base sur celui de Hashin [7] mais dans une version plus simple. Deux critères pour distinguer les deux modes de rupture (en traction), « fibre » et « matrice » sont combinés :

$$\frac{\sigma_{11}}{X} = 1$$
 pour le mode « fibre » et  $\frac{\sigma_{22}}{Y} = 1$  pour le mode « matrice »

où  $\sigma_{11}$ ,  $\sigma_{22}$  sont les contraintes longitudinales, transverses, respectivement dans les directions d'orthotropie (les fibres sont orientées dans la direction 1). X, Y sont les résistances longitudinale et transverse, respectivement. Elles sont estimées sous des sollicitations de traction réalisées dans le sens longitudinal et transversal sur des éprouvettes issus de cylindres bobinés. Le critère de Hashin permet également de prévoir une rupture sous sollicitation de type compression. Etant donné le chargement subi par les réservoirs sous pression, il n'est pas utile d'envisager ce dernier cas. La rupture se produit quand au moins une des deux équations est satisfaite. Dans le but d'alléger le modèle numérique du réservoir en composite et d'éviter les problèmes de convergence dus à la rupture brutale supposée par ce critère de rupture ([8], par exemple), ont introduit une certaine progressivité de la rupture dans les directions 0° et 90°. En effet, comme le comportement du matériau dans les directions 0° et 90° est élastique linéaire fragile, au moment de la rupture, il apparaît une chute brutale de rigidité préjudiciable à la convergence du calcul. La progressivité est introduite sous forme d'un abattement de la rigidité  $E_1$ ,  $E_2$  du matériau dans le sens 0° et 90°, selon l'évolution d'une variable d'endommagement. Dans ce type de critère de rupture, les variables d'endommagement d<sub>1</sub> et d<sub>2</sub> représentent respectivement le rapport entre l'état de contrainte et les valeurs à rupture, pour les fibres et pour la matrice, à savoir :

$$d_1 = \frac{\sigma_{11}}{X}$$
 et  $d_2 = \frac{\sigma_{22}}{Y}$ 

L'utilisation d'une subroutine « USDFLD » intégrée dans Abaqus nous permet d'actualiser les valeurs des modules de rigidité en fonction de la valeur des variables d'endommagement, de manière tabulaire. Dès que la variable d'endommagement atteint la valeur de 0.8, la valeur du module d'élasticité est diminuée de moitié dans la direction correspondante. Lorsqu'elle vaut 0.9, le module vaut 20% de la valeur initiale, puis 10% lorsque la contrainte a atteint la valeur à rupture. Ce type d'évolution de l'endommagement et de critère de rupture permet de simuler d'une manière simple et rapide la dégradation du matériau, en diminuant au maximum les temps de calcul (on ne procède en aucune façon à l'intégration locale d'une loi d'évolution de variable d'endommagement, toutes les évolutions sont interpolées par ABAQUS). Cette procédure trouvera son intérêt lors de la simulation du comportement du réservoir.

# 3 Validation du modèle

La validation proposée ici se base sur les travaux de [9]. Il s'agit d'une campagne d'essais de traction sur des plaques entaillées d'empilement  $(0_2/\pm 45_4/90_2/\pm 45_4/0_2)$ , de géométrie définie en (figure 2) et de structure représentative des réservoirs bobinés.



FIG. 2 – Dimensions (a) et empilement de l'éprouvette entaillée (b)

Les courbes force - déplacement et la configuration des deux types de rupture (fibres et matrice) sont présentées sur la (figure 3).



#### Rupture fibre

Rupture matrice



La valeur à rupture numérique est en bon accord avec les résultats issus de l'étude expérimentale réalisée malgré la simplicité du modèle. La couleur rouge indique la propagation des endommagements dans la section réduite de l'éprouvette. À partir de 11kN, la matrice commence à se rompre au bord des entailles. À 18kN, le début de la rupture des fibres explique le changement de la pente du diagramme chargement – déplacement. La structure rompt à 21kN correspondant à la propagation de la rupture des fibres et de la matrice dans la totalité de la section réduite de l'éprouvette. Les simulations éléments finis permettent de prévoir une valeur à rupture et de détecter le mode de ruine selon les deux types d'endommagement (fibres et matrice).

## 4 Confrontation du modèle dans le cas d'un réservoir

Les réservoirs se composent de trois parties : une coque en composite carbone – époxy à l'extérieur assurant la tenue mécanique de la structure, un liner en polymère pour l'étanchéité et une embase en acier permettant l'échange d'hydrogène. Les dimensions principales du réservoir sont : un volume de 2.5L, une longueur totale d'environ 400mm, une épaisseur composite d'environ 13 mm, un diamètre de 135mm. Une première géométrie EF en 3D d'une moitié du réservoir a été construite à l'aide du plugin « Wound composite layer » d'Abaqus (figure 4.a). Ce modèle est modifié en introduisant des défauts initiaux dont la géométrie est issue d'observations du réservoir impacté avec une énergie de 222 J (figure 4.b, essais d'impact réalisés à Arts & Métiers ParisTech - Bordeaux). Après impact, on observe deux fissures de délaminage et des coalescences de fissures à proximité du liner entre les plis à 20° et à 90°. La géométrie de ces endommagements est fidèlement reproduite dans le maillage (figure 4.c, d).



FIG. 4 – Structure d'une moitié du réservoir (a), observation des impacts sur les réservoirs (b), simulation en EF correspondante (c) et maillage en 3D autour des défauts (d)

On estime alors la tenue résiduelle du réservoir par le calcul de la pression d'éclatement dans les deux cas « sain » (sans introduction de défaut) et « impacté ». La pression d'éclatement d'un réservoir d'hydrogène a été étudiée par [10] à l'aide de différents critères de rupture tels que la contrainte maximale, les critères de Hoffman, Tsai-Wu et Tsai-Hill. Les états d'endommagement dans les deux cas « sain » (figure 5.a) et « impacté » (figure 5.b) sont comparés au moment de la rupture. La couleur rouge indique la rupture des fibres. Elle est apparue immédiatement dans la totalité de la couche circonférentielle la plus sollicitée dans le cas « sain » tandis que dans le cas « impacté » la rupture des fibres a débuté dans la zone de la concentration de la contrainte où se trouvent des défauts initiaux. La (figure 5.c) présente l'évolution du déplacement radial D en fonction de la pression interne qui augmente régulièrement. Pour chaque courbe tracée, le point final indique le niveau de pression à l'éclatement obtenu en considérant que la rupture survient lorsque le déplacement radial augmente fortement. La pression d'éclatement en état sain est de 1650 bars. On note que la présence du défaut provoque une diminution de la pression d'éclatement d'environ 31.5%. Les principales conclusions de ces comparaisons sont que ces analyses complexes utilisant des modèles 3D peuvent donner une première estimation de la diminution de la tenue résiduelle du réservoir impacté. La valeur de cet abattement est cependant susceptible d'être affectée par un certain nombre de paramètres comme : le nombre d'éléments du maillage du réservoir, la non – uniformité et la densité du maillage dans la partie introduisant des défauts initiaux. Une étude paramétrique est en cours de réalisation.





FIG. 5 – Etat d'endommagement dans le cas « sain » (a), dans le cas « impacté » (b) et diagramme pression interne – déplacement radial (c)

Ce modèle va permettre de développer la compréhension des phénomènes d'endommagements liés à des chocs de différents niveaux d'énergie, ainsi que les mécanismes d'évolution des dommages pour les réservoirs en exploitation qui verront des maintiens en pression prolongés et des cycles de pression répétées.

# Références

[1] Choi H. Y. and Chang F. K., A model for predicting damage in graphite epoxy laminated composites resulting from low - velocity point impact. Journal of Composite Materials. 26(14) 2134-2169, 1992.

[2] Her S. C. and Liang Y. C., The finite element analysis of composite laminates and shell structures subjected to low velocity impact. Composite Structures. 66(1-4) 277-285, 2004.

[3] Laurin F., Carrere N. and Maire J. F., A multiscale progressive failure approach for composite laminates based on thermodynamical viscoelastic and damage models. Composites Part a-Applied Science and Manufacturing. 38(1) 198-209, 2007.

[4] Feld N., Allix O., Baranger E. and Guimard J. M., Micro-mechanical prediction of UD laminates behavior under combined compression up to failure: influence of matrix degradation. Journal of Composite Materials. 45(22) 2317-2333, 2011.

[5] Revest N., Comportement en fatigue de pièces épaisses en matériaux composites. Thèse de l'École Nationale Supérieure des Mines de Paris, France, 2011.

[6] Gentilleau B., Modélisation et validation expérimentale du comportement thermomécanique de multicouches polymère/composite bobiné : Application au stokage d'hydrogène hyperbare. Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique, 2012.

[7] Hashin Z., Failure criteria for unidirectional fiber composites., Journal of Applied Mechanics-Transactions of the Asme. 47(2) 329-334, 1980.

[8] Liu P. F. and Zheng J. Y., Progressive failure analysis of carbon fiber/epoxy composite laminates using continuum damage mechanics. Materials Science and Engineering a-Structural Materials Properties Microstructure and Processing. 485(1-2) 711-717, 2008.

[9] Berro Ramirez J. P., Halm D. and Grandidier J. C., Simulation de la rupture de structures composites bobinées par une approche à directions fixes de l'endommagement. JNC 18, Nantes, 2013.

[10] Xu P., Zheng J. Y. and Liu P. F., Finite element analysis of burst pressure of composite hydrogen storage vessels. Materials & Design. 30(7) 2295-2301, 2009.