



Universidad de Oviedo
Universidá d'Uviéu
University of Oviedo

Programa de Doctorado de Materiales

ANÁLISIS NUMÉRICO DE LA FRAGILIZACIÓN POR
HIDRÓGENO MEDIANTE MODELOS DE FISURA
COHESIVA

TESIS DOCTORAL

Susana del Busto González

Diciembre 2017



Universidad de Oviedo
Universidá d'Uviéu
University of Oviedo

Programa de Doctorado de Materiales

ANÁLISIS NUMÉRICO DE LA FRAGILIZACIÓN POR
HIDRÓGENO MEDIANTE MODELOS DE FISURA
COHESIVA

TESIS DOCTORAL

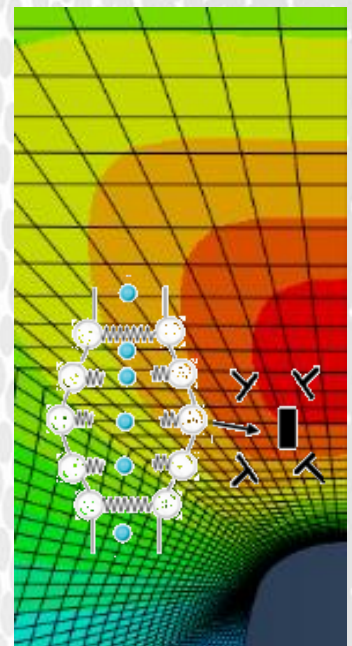
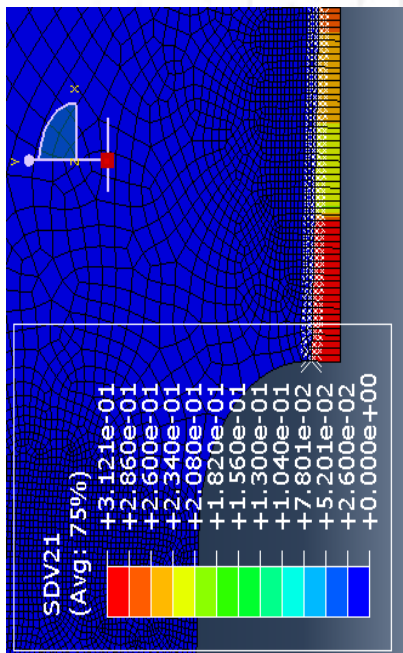
Directores de tesis

Covadonga Betegón Biempica

Emilio Martínez Pañeda

Análisis numérico de la fragilización por hidrógeno mediante modelos de fisura cohesiva

Susana Del Busto González



*Los grandes conocimientos engendran las
grandes dudas.*

- *Aristóteles*

*El que se enamora de la práctica sin ciencia, es
como el marino que sube al navío sin timón ni
brújula, sin saber con certeza.*

- *Leonardo Da Vinci*

*Un científico en su laboratorio no es sólo un
técnico: es también un niño colocado ante
fenómenos naturales que le impresionan como un
cuento de hadas.*

- *Marie Curie*

Esta tesis se presenta como compendio de publicaciones para la obtención del título de Doctor por la Universidad de Oviedo, siguiendo el acuerdo 21 de julio de 2011, del Consejo de Gobierno de la Universidad de Oviedo, por el que se aprueba el Reglamento de los Estudios de Doctorado.

Los artículos que forman parte de esta tesis y han sido publicados en revistas indexadas en el Journal Citation Report (JCR) son:

1. E. Martínez-Pañeda, S. del Busto, C. F. Niordson, and C. Betegón, “*Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip*,” *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 41, pp. 10265–10274, 2016.

Índice de impacto: [3.582](#)

2. S. del Busto, C. Betegón, and E. Martínez-Pañeda, “*A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue*,” *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 185, pp. 210-226, 2017.

Índice de impacto: [2.151](#)

3. Martínez-Pañeda, S. del Busto, and C. Betegón, “*Non-local plasticity effects on notch fracture mechanics*,” *Theor. Appl. Fract. Mech.*, vol. 92, pp. 276-287, 2017.

Índice de impacto : [2.659](#)

Los materiales metálicos se utilizan masivamente en estructuras y componentes industriales. Sin embargo, la fragilización por hidrógeno degrada significativamente el comportamiento mecánico de metales y aleaciones, comprometiendo la integridad estructural en numerosas aplicaciones industriales. Uno de los grandes retos de nuestro tiempo es el desarrollo de modelos que permitan predecir el inicio y la propagación del daño en ambientes corrosivos. El presente trabajo de tesis aspira a contribuir a dicho objetivo empleando modelos de zona cohesiva y una caracterización mecanística del comportamiento mecánico en la vecindad de la grieta.

En primer lugar, se propone un modelo de fisura cohesiva capaz de modelizar el daño debido a la carga cíclica y a la fragilización por hidrógeno. El marco numérico desarrollado incluye, de forma acoplada, (i) transporte de masa, incorporando la influencia de las trampas microestructurales, (ii) comportamiento mecánico caracterizado por la teoría de Plasticidad J2 en deformaciones finitas, y (iii) agrietamiento, por medio de una ley de tracción-separación. El modelo reproduce cualitativamente las tendencias relevantes observadas en los ensayos experimentales y las diferencias cuantitativas existentes son discutidas extensamente. Los resultados muestran que para alcanzar un acuerdo cuantitativo es necesario que la concentración de hidrógeno en la zona de proceso de fractura sea significativamente mayor. Una posibilidad, en concordancia con los ensayos en la microescala y las simulaciones de la dinámica de dislocaciones, es que la tensión, y por consiguiente la concentración de hidrógeno, se incrementa considerablemente cuando se acumulan en un volumen pequeño gradientes de deformación plástica. Este efecto de la deformación plástica no homogénea y su elevación tensional se puede capturar en el medio continuo por medio de teorías de gradientes de deformación plástica.

En la segunda parte de la tesis, se analiza la influencia de las teorías de gradientes de deformación plástica en el transporte de hidrógeno hacia la zona de proceso de fractura. Para ello se conecta un modelo de transporte de masa con un modelo de gradientes de deformación plástica basado en una descripción fenomenológica de la influencia de las dislocaciones geoméricamente necesarias. Los resultados muestran que cerca de la grieta se acumulan grandes gradientes de deformación, elevando las tensiones y la concentración de hidrógeno en la red. Las predicciones del modelo se comparan con resultados experimentales, observándose un acuerdo cuantitativo, en contraste con las predicciones de la plasticidad convencional.

Resumen

Finalmente se investiga el inicio y la propagación de grietas a partir de defectos tipo entalla empleando las teorías de gradientes de deformación plástica. Se consideran numerosas geometrías, intentando abarcar los defectos tipo entalla más comunes, y se obtienen resultados para carga monotónica y fatiga. El modelo predice una influencia importante de los gradientes de deformación plástica, mostrando la necesidad de caracterizar de forma precisa los campos tensionales en la vecindad de defectos en componentes estructurales.

Un modelo numérico que reproduzca con fidelidad la fractura asistida por hidrógeno abre muchas posibilidades, donde la rapidez y el bajo coste de las predicciones puede ser clave en la evaluación y cuantificación de los riesgos en componentes industriales. Asimismo, la posibilidad de realizar ensayos virtuales con precisión abre la puerta a un uso controlado de aceros de alta resistencia en el sector energético, entre otros. Los resultados resaltan la importancia de caracterizar de forma precisa el endurecimiento del material y avalan la idoneidad de los modelos de fisura cohesiva para la predicción de la fragilización por hidrógeno tanto bajo cargas monotónicas como cíclicas.

Metallic materials have been widely used in industrial structures and components. However, hydrogen embrittlement significantly degrades their mechanical resistance, compromising structural integrity in a wide range of industrial applications. One of the greatest challenges of our time is the development of models able to predict crack initiation and propagation in corrosive environments. The present doctoral thesis aims to contribute to this end by means of cohesive zone models, and a mechanistic characterization of mechanical response in the vicinity of the crack tip.

First, a cohesive zone model capable of modeling damage due to cyclic loading and hydrogen embrittlement is proposed. The coupled numerical framework presented builds upon: (i) mass transport, incorporating the influence of microstructural traps, (ii) mechanical behaviour characterized by finite J2 plasticity theory, and (iii) cracking, by means of a traction-separation law. The model qualitatively reproduces the relevant trends showed in experimental tests and quantitative differences are extensively discussed. Results show that higher levels of hydrogen concentration in the fracture process zone are needed to achieve a quantitative agreement with experiments. One possibility, as shown by micro-scale tests and dislocation dynamics simulations, is that the flow stress, and consequently the hydrogen concentration, increases when plastic strain gradients are confined in a small volume. This stress elevation associated with non-uniform plastic deformation can be phenomenologically captured by means of strain gradient plasticity theories.

On the second part of the thesis, hydrogen diffusion towards the fracture process zone has been examined thoroughly by means of a strain gradient plasticity model. A mass transport model is coupled with phenomenological gradient plasticity formulation to account for the role of geometrically necessary dislocations. Results reveal large gradients of plastic strain in the vicinity of the crack, magnifying the stresses and lattice hydrogen concentration distributions. In addition, strain gradient plasticity estimations provide a quantitative agreement with the experimental results as opposed to conventional plasticity predictions.

Finally, crack initiation and propagation from notch-like defects is assessed by means of strain gradient plasticity theories. A wide range of geometries has been considered to embrace the majority of common notch types and results under monotonic and cyclic loading are obtained. Model

A**bstract**

predictions reveal a strong influence of plastic strain gradients, denoting the need of an accurate characterization of notch tip fields in structural components.

A physically-sound numerical model for hydrogen embrittlement opens up many possibilities, enabling rapid and economic predictions that could be key to risk quantification in industrial components. Virtual testing in corrosive environments would enable a controlled use of high strength steels in the energetic sector, among others. Results reveal the importance of an appropriate characterization for material hardening and endorse the suitability of cohesive zone models to predict hydrogen embrittlement under both monotonic and cyclic loading.

En primer lugar quiero expresar mi agradecimiento a la Dra. Covadonga Betegón y al Dr. Emilio Martínez Pañeda por su incondicional apoyo y calidad humana. Gracias por los innumerables consejos e inestimable colaboración y ayuda, habéis sido mi brújula en este apasionante viaje por el paradigma de la investigación durante casi cuatro años, aunque ahora miro hacia atrás y me ha parecido tan solo un instante, y a veces quisiera eternizar ese instante. Quiero también agradecer a mis profesores del master de Integridad Estructural porque gracias a ellos me he embarcado en esta aventura en la frontera del conocimiento, donde el conocimiento engendra grandes dudas, y las dudas ayudan casi siempre a encontrar respuestas. Mecánica de la fractura y Simulación Numérica han sido el equipaje de mano que junto a una maleta repleta de conocimientos especializados me han acompañado y ayudado a no encontrarme desamparada durante este viaje. Gracias Dra. Inés Peñuelas por el equipaje de mano, gracias Dr. Javier Belzunce, Dra. Cristina Rodríguez, Dra. Inés Pariente, y a los demás profesores del master, aunque sus nombres no ocupan estas líneas que escribo, en mi mente están los excelentes recuerdos que tengo como alumna de sus clases, por ayudarme a llenar la maleta con el mejor equipaje. Gracias Dra. Cristina Rodríguez por tener siempre abierta la puerta del despacho, por escucharnos y encontrar siempre las palabras precisas, porque, aunque los conocimientos son muy valiosos, tu nos has transmitido además otra forma de valor aún más fuerte que el conocimiento. Gracias, Dr. Javier Belzunce por compartir el conocimiento en los seminarios organizados dentro del programa de doctorado, siempre he escuchado con muchísima atención, y siempre me ha parecido que las charlas eran demasiado cortas, como Einstein también pienso que el tiempo debe ser relativo. Gracias Dr. Alfonso Fernández Canteli, por ser un mentor con una calidad humana excepcional, por enseñarnos que en la seriedad y el protocolo de la investigación siempre hay lugar para el buen humor, y que los méritos y los reconocimientos que un investigador va obteniendo en su carrera no valen nada sin humildad. Gracias de nuevo a la Dra. Covadonga Betegón y al Dr. Emilio Martínez Pañeda, por ayudarme a bucear en el mundo de la investigación durante la realización del trabajo fin de master, y a darme cuenta que me apasionaba la investigación; y porque durante estos años, con vuestra disponibilidad y apoyo, siempre habéis estado ahí, acompañándome de forma activa y participativa en este emocionante viaje.

Gracias a mis compañeros actuales de la sala VIP por compartir cada día en este largo y a la vez corto viaje, por su inestimable ayuda durante estos casi cuatro años (Covadonga Quintana, Dr. Miguel Muñiz), a los que pasaron por esta sala cuando empecé (Dr. Emilio Martínez, Dr. Tomás García, Dr.

Agradecimientos

Alberto Ramos), y a los compañeros del laboratorio (Adrián, Alfredo, Borja, Eva, Isma, Guillermo, Miguel, Sergio, Silvia) por su ayuda e interesantes discusiones, por tantas horas gastadas que quedarán en mi mente, almacenadas en mi memoria para siempre, porque los buenos recuerdos deben permanecer imborrables siempre. Gracias a una larga lista de personas (Dr. Pelayo Fernández, Dra. Marta García, Dra. M^a Jesús Lamela, Dr. Carlos López-Colina, Dr. Marcos Pérez, Dra. M^a Elvira Segurado) por ser también partícipes de estos momentos.

Mi gratitud a todas aquellas personas e instituciones que con su ayuda y colaboración han hecho posible que este apasionante viaje haya sido una experiencia muy positiva, contribuyendo a la transferencia del conocimiento sin fronteras. Mi agradecimiento especial a la Universidad de Oviedo como institución, por haberme acompañado y guiado durante estos años con un excelente equipo humano. Mi especial agradecimiento al Dr. Christian Niordson (Technical University of Denmark), por su trascendental contribución, ayudándonos a encontrar respuestas a los grandes interrogantes de la investigación.

Mi especial agradecimiento a mis padres y a mi hermano, por su continuo apoyo y paciencia durante estos años, gracias por el balón de oxígeno en aquellos momentos que más lo necesitaba. Gracias a mis amigas por apoyarme, aunque quedamos menos la verdadera amistad es una llama que nunca se extingue.

1. INTRODUCCIÓN	21
1.1. Antecedentes	21
1.1.1. Agrietamiento asistido por hidrógeno	21
1.1.2. Modelos de zona cohesiva	32
1.1.3. Teorías de gradientes de deformación plástica	41
1.2. Motivación	47
1.3. Estructura de la Tesis	49
2. OBJETIVOS	51
3. DISCUSIÓN DE RESULTADOS	53
3.1. Publicación A	53
3.2. Publicación B	59
3.3. Publicación C	64
4. CONCLUSIONES	71
4.1. Logros	71
4.2. Conclusiones	72
4.3. Trabajo futuro	74
4. CONCLUSIONS	77
4.1. Achievements	77
4.2. Concluding remarks	78
4.3. Future work	80
BIBLIOGRAFÍA	81
<i>PAPER A: A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue</i>	82
<i>PAPER B: Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip</i>	82
<i>PAPER C: Non-local plasticity effects on notch fracture mechanics</i>	82

Lista de Figuras

Figura 1.1: Diagrama esquemático del mecanismo HEDE	22
Figura 1.2: Hitos experimentales (descohesión)	23
Figura 1.3: Hitos teóricos (descohesión)	24
Figura 1.4: Diagrama esquemático del mecanismo HELP	25
Figura 1.5: Hitos experimentales (HELP)	26
Figura 1.6: Hitos teóricos (HELP)	26
Figura 1.7: Distribución de las trampas y de la concentración de hidrógeno	29
Figura 1.8: Simulación numérica del comportamiento del material cohesivo	32
Figura 1.9: Leyes tracción-separación más populares	34
Figura 1.10: Leyes cohesivas con acumulación del daño cíclico	36
Figura 1.11: Efecto de la concentración de hidrógeno en la ley cohesiva.	39
Figura 1.12: SGP causados por la deformación de la geometría, las condiciones de contorno o la microestructura	42
Fig 1.13: GNDs en una viga sometida a flexión	43
Fig 1.14: Distribución de la tensión hidrostática para el acero Aermet™100	46

Lista de Tablas

Tabla 1.1: Clasificación de las teorías SGP

44

Lista de Acrónimos

HEDE	Hydrogen Enhanced Decohesion
HELP	Hydrogen Enhanced Localized Plasticity
IHAC	Internal Hydrogen Assisted Cracking
HEAC	Hydrogen Environment Assisted Cracking
CZM	Cohesive Zone Model
NILS	Normal Interstitial Lattice Sites
FPZ	Fracture Process Zone
GNDs	Geometrically Necessary Dislocations
SSDs	Statistically Stored Dislocations
MSG	Mechanism-based Strain Gradient Plasticity
CMSG	Conventional Mechanism Strain Gradient Plasticity
SGP	Strain Gradient Plasticity

Terminología

N_T	Número de trampas por unidad de volumen
ϵ_p	Deformación plástica equivalente
ρ	Densidad de dislocaciones
a	Parámetro de red
K_{TH}	Umbral del factor de intensidad de tensiones
$\sigma_{max,0}$	tensión cohesiva crítica o resistencia a tracción del material
Γ_0	Energía específica de fractura cohesiva
l_{ch}	Longitud característica del material cohesivo
θ_H	Cobertura de hidrógeno
C	Concentración total de hidrógeno
C_L, C_T	Concentración de hidrógeno en la red y en las trampas de hidrógeno
Δg_b^0	Energía libre de Gibbs
E_B	Energía de enlace de la trampa de hidrógeno
R	Constante universal de los gases
T	Temperatura absoluta
σ_Y	Límite elástico
E	Módulo de Young
ν	Coefficiente de Poisson

Terminología

f	Frecuencia de la carga
R	Relación de tensiones
C, m	Coefficientes de la ley de Paris
a	Longitud de grieta
N	Número de ciclos
K	Factor de intensidad de tensiones
R_0	Longitud plástica de referencia
D	Variable de daño
N	Coefficiente de endurecimiento por deformación
T	Tensión-T elástica
σ_H	Tensión hidrostática
l_i	Longitud característica del material
\mathcal{D}	Coefficiente de difusión
c_0	Concentración de hidrógeno inicial
α	Ángulo de entrada de la entalla
P_{max}	Carga crítica entalla

1. Introducción

1.1. Antecedentes

Los sistemas energéticos actuales y futuros basados en el hidrógeno requieren de la producción, transporte, almacenaje y utilización del hidrógeno gaseoso, con frecuencia operando a altas presiones por encima de los 100 MPa. La seguridad y durabilidad de estos sistemas se ve seriamente comprometida por la degradación que sufren los materiales en presencia de hidrógeno.

La fragilización por hidrógeno es un fenómeno que, debido a su relevancia en la industria y en muchas aplicaciones ingenieriles, ha promovido un enorme esfuerzo investigador de la comunidad científica que dura ya más de un siglo. Sin embargo, el trabajo desarrollado por los científicos no ha sido trasladado suficientemente a la práctica ingenieril.

Uno de los grandes retos de nuestro tiempo es transformar el debate de los mecanismos responsables del daño por hidrógeno y centrarse en el desarrollo de modelos predictivos cuantitativos. Para mejorar su capacidad predictiva, incluir el efecto plástico de escala en la modelización numérica de la fragilización por hidrógeno parece ineludible a tenor de los resultados experimentales. Además, es necesario considerar el efecto de los gradientes de deformación plástica, no solo en grietas, sino también en defectos tipo entalla que aparecen en el material en los procesos de manufactura y durante el servicio.

En esta sección se presenta una completa revisión bibliográfica de los mecanismos responsables del agrietamiento asistido por hidrógeno tanto en grietas como entallas, de los recientes avances de los modelos numéricos predictivos cuya formulación se basa en los modelos de zona cohesiva y de las teorías de plasticidad no local basadas en los gradientes de deformación.

1.1.1. Agrietamiento asistido por hidrógeno

La fragilización por hidrógeno es un fenómeno físico-químico-metalúrgico que causa una disminución de la ductilidad y la tenacidad en los metales y aleaciones comprometiendo la integridad

estructural de los componentes, materiales y estructuras. El fenómeno de fragilización inducida por el ambiente fue observado por primera vez por Johnson [1], siendo posteriormente estudiado extensamente tanto de forma experimental [2–5], como numérica [6–15]. En la actualidad, el agrietamiento asistido por hidrógeno sigue ocasionando fallos prematuros y catastróficos en las estructuras de acero, siendo en consecuencia una limitación importante a la hora de utilizar aceros de alta resistencia [16].

Mecanismos de fragilización por hidrógeno

Aunque existe cierta controversia acerca de los mecanismos atómicos implicados en la fragilización por hidrógeno, existe cierto consenso en base a observaciones experimentales de los dos mecanismos básicos responsables del agrietamiento asistido por hidrógeno: la descohesión atómica potenciada por el hidrógeno (**HEDE**, *Hydrogen Enhanced Decohesion*), y la plastificación local producida por el hidrógeno (**HELP**, *Hydrogen Enhanced Localized Plasticity*). El mecanismo **HEDE** considera que la presencia de hidrógeno intersticial, adsorbido o segregado en las juntas de grano causa un debilitamiento de los enlaces interatómicos, reduciéndose así la energía cohesiva en la red cristalina del metal y por ende la energía necesaria para la fractura (Fig. 1.1) [17].

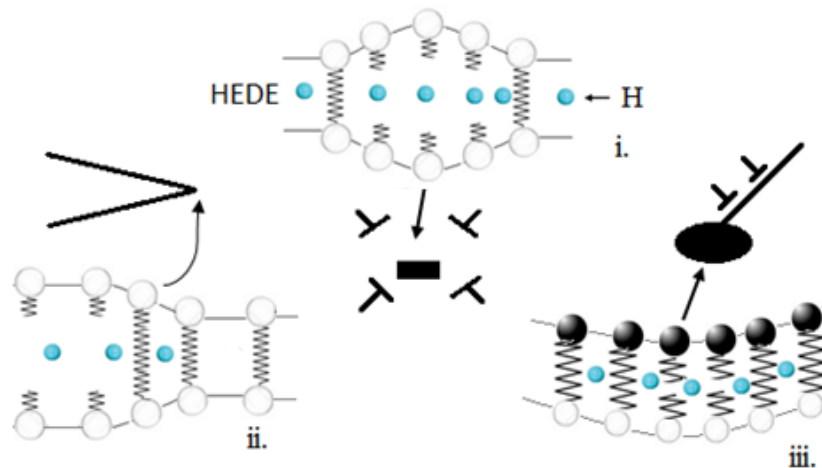


Figura 1.1: Diagrama esquemático del mecanismo **HEDE** donde se representa a modo ilustrativo el debilitamiento de la tensión cohesiva causada por el hidrógeno intersticial (i), el hidrógeno adsorbido (ii), el hidrógeno segregado en las juntas del grano (iii). Adaptado de [17].

Las figuras 1.2 y 1.3 muestran esquemáticamente los principales logros, experimentales y numéricos (respectivamente) que han propiciado la aceptación de la teoría HEDE por parte de la comunidad científica internacional.

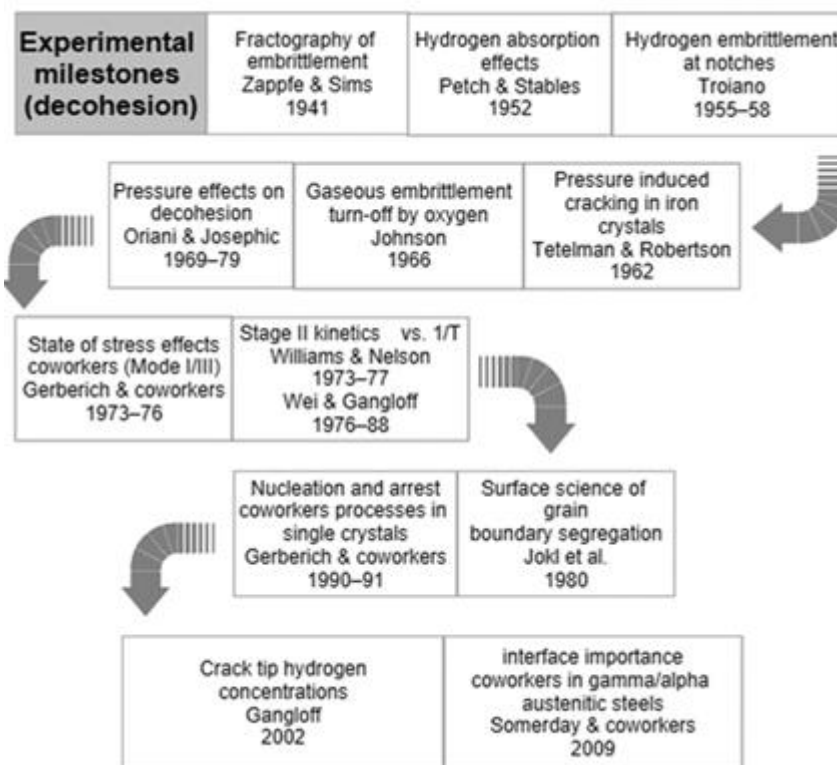


Figura 1.2: Hitos experimentales (descohesión). Adaptado de [18].

En cuanto a las observaciones experimentales que motivaron la aceptación de la teoría HEDE, las observaciones fractográficas de la descohesión en los planos de clivaje a lo largo de los planos cristalográficos correspondientes a una fractura frágil llevadas a cabo por Zappfe y Sims [19] en la década de 1940, mostraron las primeras evidencias experimentales del mecanismo atómico de descohesión potenciada por el hidrógeno.

En la década de 1950, Troiano [20] estableció de forma experimental el papel de la tensión hidrostática en la difusión del hidrógeno hacia la zona de fractura en probetas entalladas; y una década más tarde, en el marco de la carrera espacial, Johnson y sus estudiantes determinaron que la zona de

influencia del hidrógeno en estado gaseoso o en solución acuosa esta muy próxima a la punta de grieta [21].

En la década de 1970, C. St. John y W. W. Gerberich [22] analizaron el efecto del modo de carga en la fragilización por hidrógeno concluyendo que el modo I es el que más facilita la difusión del hidrógeno intersticial. Williams y Nelson [23] y Van Leeuwen [24] modelizaron con más precisión la cinética del crecimiento de grieta. Van Leeuwen modelizó la difusión del hidrógeno mediante la primera y segunda ley de Fick modificada añadiendo un termino dependiente de la tensión hidrostática [24].

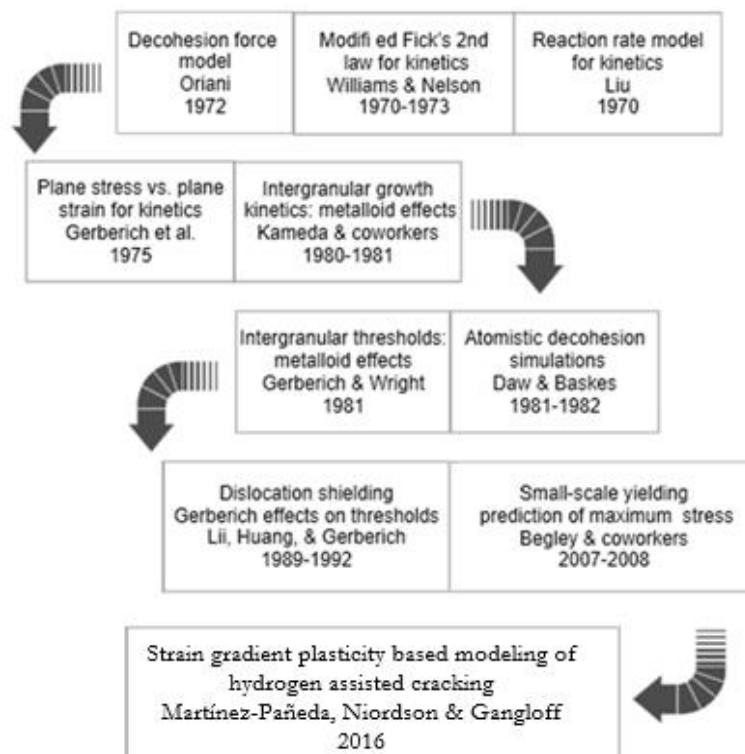


Figura 1.3: Hitos teóricos (descohesión). Adaptado de [18].

A principios de la década de 1980, Gerberich y Wright [25] desarrollaron un modelo para determinar el umbral del factor de intensidad de tensiones en presencia de hidrógeno. En los años 80 y 90, Huang y Gerberich [26] analizaron los efectos de las dislocaciones en el umbral del factor de intensidad de tensiones en presencia de hidrógeno.

En la década de 1990, Daw y Baskes [27] y Foiles et al. [28] llevaron a cabo simulaciones a nivel atómico a partir de la técnica embedded atom method demostrando que el hidrógeno podría causar una reducción de la energía de cohesión en la frontera de los bordes del grano en el Ni.

En los 2000, teniendo en cuenta que se necesita un elevado nivel tensional y de elevadas concentraciones de hidrógeno para romper los enlaces interatómicos, Gangloff et al. [29,30] mostraron que los gradientes de deformación plástica son capaces de justificar el elevado nivel tensional en las cercanías de la punta de grieta.

Por su parte, el mecanismo **HELP** estudia la interrelación entre el hidrógeno y la plasticidad [17] (Fig. 1.4). Beachem (en 1972) basándose en observaciones fractográficas fue el primero en sugerir que el hidrógeno soluto facilitaba el movimiento de las dislocaciones [31]. A partir de 1980, Birnbaum et al. [32], basándose en las observaciones experimentales mediante el microscopio electrónico de transmisión, consideran el mecanismo **HELP** como responsable del aumento de la velocidades de las dislocaciones debido a la presencia de hidrógeno en el material. Desde entonces han sido numerosos los estudios experimentales que han buscado identificar los mecanismos relacionados con la plasticidad localizada inducida por el hidrógeno (Fig.1.5).

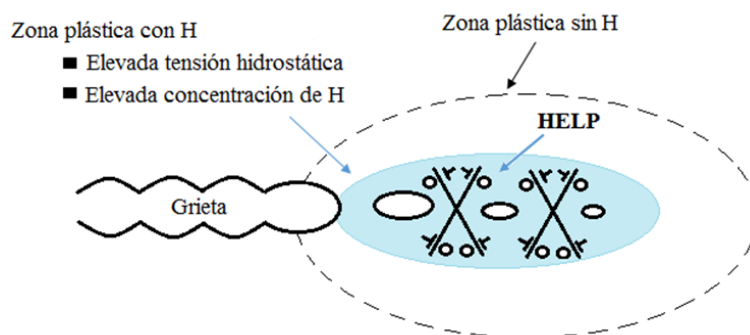


Figura 1.4: Diagrama esquemático del mecanismo HELP con proceso de coalescencia de microhuecos, plasticidad localizada y facilitada en regiones con altas concentraciones de hidrógeno. Adaptada de [17].

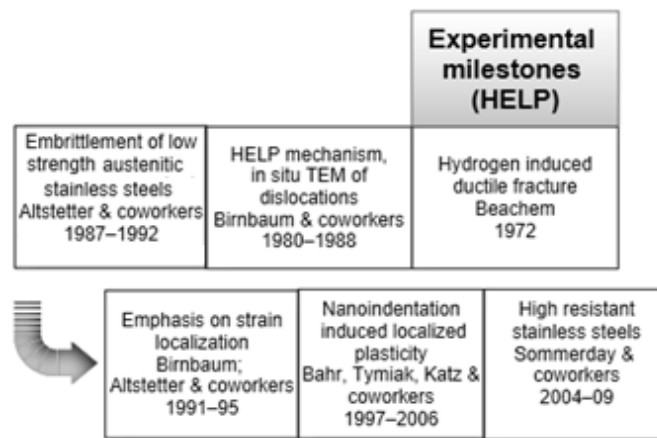


Figura 1.5: Hitos experimentales (HELP). Modificada de [18].

En la decada de 1970, Tetelman [33] analizó el efecto de la presión del hidrógeno en la nucleación y crecimiento de los microhuecos y su relación con la fractura dúctil. A pesar de las numerosas aportaciones (Fig. 1.6), las bases teóricas para la teoría HELP son establecidas en la decada de los 2000. Las simulaciones atomísticas llevadas a cabo por Kaxiras et al. [34] y la modelización numérica del mecanismo HELP realizada por Sofronis et al. [35] facilitaron el estudio de la fragilización asistida por hidrógeno.

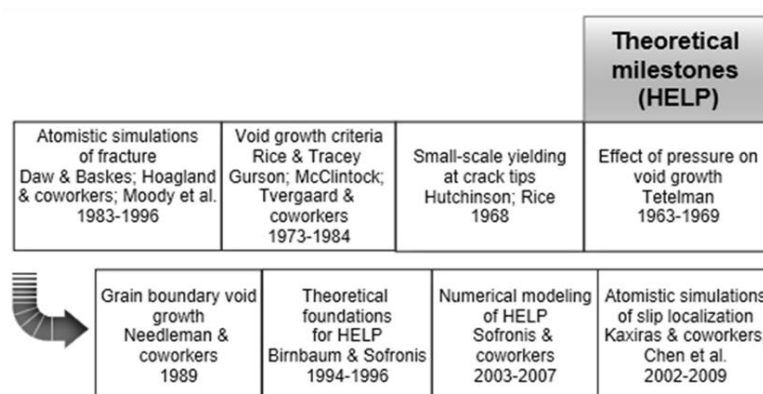


Figura 1.6: Hitos teóricos (HELP). Modificada de [18].

Existe cada vez más consenso de que el mecanismo de descohesión atomística potenciada por el hidrógeno es el mecanismo dominante de la fragilización por el hidrógeno interno (IHAC, *internal hydrogen assisted cracking*) y de la fragilización por hidrógeno asistida por el ambiente (HEAC, *hydrogen*

environment assisted cracking) en aleaciones de alta resistencia [36]. Beachem [31] y Birnbaum et al. [37] encontraron evidencias de que el modelo de plastificación local producida por el hidrógeno era el mecanismo dominante en los aceros inoxidables austeníticos y el responsable de su baja resistencia a la corrosión. Novak, Yuan, Somerday, Sofronis y Ritchie han sugerido que la fragilización por hidrógeno implica una combinación de ambos mecanismos [9].

Modelos del Transporte del hidrógeno

Una vez realizada la revisión bibliográfica de los principales mecanismos atomísticos implicados en la fragilización por hidrógeno, se procede a revisar los modelos de transporte del hidrógeno, puesto que para predecir la degradación de las propiedades mecánicas del material es preciso evaluar con concreción cómo se distribuye el hidrógeno en el material.

El hidrógeno atómico puede situarse en los sitios intersticiales de la red (*NILS, Normal Interstitial Lattice Sites*) o acumularse en varias heterogeneidades en la microestructura como dislocaciones, bordes de grano, inclusiones, huecos, defectos como impurezas en los átomos o en la superficie, descritas como trampas de hidrógeno [38]. Entre los avances teóricos para capturar el efecto de las trampas en el transporte del hidrógeno se encuentran los pioneros modelos propuesto por McNabb y Foster [39] y Oriani [40]. La teoría de Oriani asume un equilibrio local entre el hidrógeno en las trampas reversibles y el hidrógeno en la red, bajo la asunción de que la cinética de ocupación de las trampas es muy rápida [40].

La habilidad de una trampa para captar el hidrógeno esta relacionada con la energía de enlace de la trampa E_B que puede ser determinada de forma experimental para una microestructura específica mediante permeación química [41] o espectrometría de desorción térmica [24,42]. Dado que existe una amplia variedad de trampas de hidrógeno, con el fin de simplificar los efectos las trampas, estas han sido clasificados según el carácter de reversibilidad [43]. Las trampas con una energía de enlace por encima de 60-70 kJ/mol son típicamente consideradas como trampas irreversibles en los aceros [40]. La elevada energía de enlace E_B supone que las trampas irreversibles no van a soltar hidrógeno con facilidad [44]; con lo que parecen no tener un impacto directo en la difusión del hidrógeno.

Aunque existe una gran variedad de trampas, parece ser que las trampas de hidrógeno correspondientes a las dislocaciones juegan un papel predominante en la fractura del hidrógeno intergranular [45]. La densidad de las trampas de hidrógeno debida a las dislocaciones es dependiente de la deformación plástica local. Para relacionar el número de trampas por unidad de volumen N_T con la deformación plástica ε_p , Kumnick y Johnson [46] propusieron una relación fenomenológica acorde con los resultados experimentales llevados a cabo mediante ensayo de permeación para el hierro en una atmósfera con hidrógeno gaseoso, dada por:

$$\log N_T = 23.26 - 2.33 \exp(-5.5 \varepsilon_p) \quad (1.1)$$

Además de las relaciones empíricas obtenidas a partir de los ensayos experimentales, existe la posibilidad de obtener N_T relacionándolo con la densidad de dislocaciones. Sofronis et al. [47] manteniendo consistencia con los resultados experimentales de Thomas [48] relacionaron la densidad de dislocaciones ρ con la densidad de trampas N_T como:

$$N_T = \frac{\sqrt{2}}{a} \rho \quad (1.2)$$

Siendo a el parámetro de red. La densidad de dislocaciones se considera que varía linealmente con la deformación plástica equivalente de acuerdo con:

$$\rho = \begin{cases} \rho_0 + \gamma \varepsilon_p & \text{para } \varepsilon_p < 0.5 \\ 10^{16} & \text{para } \varepsilon_p \geq 0.5 \end{cases} \quad (1.3)$$

Donde $\rho_0 = 10^{10} \text{ m/m}^3$ es la densidad de dislocaciones para el material recocido y $\gamma = 2.0 \cdot 10^{16} \text{ m/m}^3$.

En la figura se comparan los diferentes modelos para el caso de tensión uniaxial. Se asumen las mismas condiciones de los experimentos de Kumnick y Johnson [46]. La densidad de dislocaciones en las trampas de hidrógeno en el modelo de Sofronis et al. [47,49] es ostensiblemente mayor que la obtenida por Kumnick y Johnson [46].

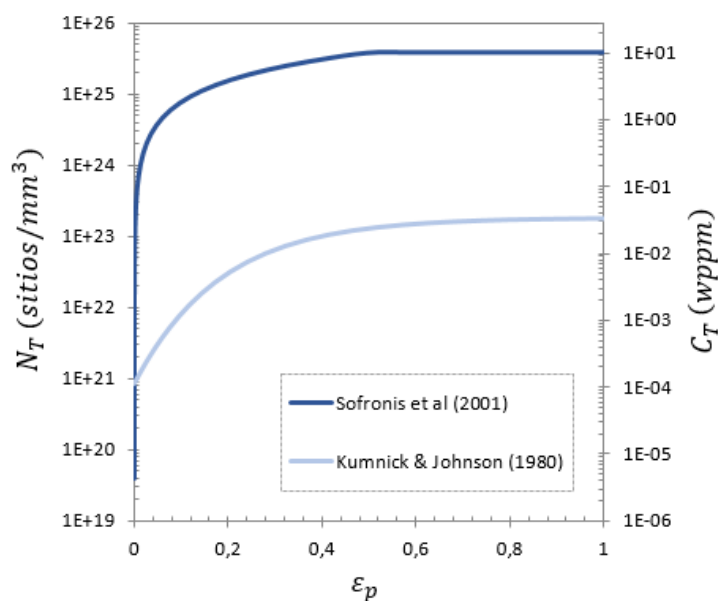


Figura 1.7: Representación gráfica de las densidades de las trampas y de la concentración de hidrógeno en las trampas de acuerdo con el trabajo de Kumnick y Johnson [46] y el modelo de Sofronis et al. [47, 49].

Modelos matemáticos y numéricos de difusión del hidrógeno

La ecuación que gobierna el proceso de difusión del hidrógeno es la ley de Fick. En términos de potencial químico, Li et al. [50] analizaron la influencia de la tensión hidrostática y por ende el hecho de que la primera ley de Fick no es suficiente para describir la difusión del flujo. Willian y Nelson [23] y Van Leeuwen [24] modelizaron la cinética del crecimiento de grieta basándose en la segunda ley de Fick modificada. Más recientemente, Sun et al. [51] y Gao et al. [52] encontraron evidencias de la influencia de la tensión hidrostática en la distribución del hidrógeno en las proximidades de la punta de grieta.

De acuerdo con la ley de conservación de la masa y siguiendo las condiciones de equilibrio propuestas por Oriani [40], Sofronis y McMeeking propusieron un modelo pionero para el transporte del hidrógeno en grandes deformaciones considerando la concentración de hidrógeno constante en las condiciones de contorno y modelizando la competición entre la deformación inducida por las trampas de hidrógeno debidas a las dislocaciones y la tensión hidrostática en la distribución del hidrógeno en la vecindad de la punta de grieta [7].

Este modelo fue objeto de posteriores modificaciones para incluir el efecto de distintos factores. Así, Krom et al. [8] consideraron la dinámica de creación de trampas incorporando un tercer término adicional para modelizar el efecto de la velocidad de deformación; Turnbull et al. [53] desarrollaron un modelo matemático basado en la alta ocupación de las trampas referido a la no linealidad de las ecuaciones; y Novak y sus colaboradores [9] acoplaron el modelo de Sofronis y McMeeking con el modificado de Krom a partir del planteamiento de que el papel del hidrógeno en la fragilización esta asociado al movimiento de las dislocaciones.

Recientemente Di Leo y Anand [54]; establecieron que la concentración de hidrógeno en las condiciones de contorno no es constante, sino que resulta más apropiado imponer un potencial químico constante, ya que la concentración de hidrógeno en la red depende también de la tensión hidrostática. Este enfoque es especialmente relevante en el caso de modelos numéricos que incorporen las teorías de los gradientes de deformación plástica.

Las simulaciones numéricas en el ambito de la teoría de la plasticidad convencional predicen tensiones en la punta de grieta no demasiado elevadas, del orden de 3 a 5 veces σ_0 , que conducirían a concentraciones de hidrógeno moderadas que no parecen ser suficientes para justificar la fractura frágil en presencia de deformación plástica, ya que presumiblemente esto implicaría la rotura de los enlaces para tensiones mucho mayores ($\sim 10\sigma_0$). De forma experimental, numerosos ensayos en la escala micro [55–57] han demostrado la importancia de las dislocaciones geoméricamente necesarias (*GNDs, Geometrically Necessary Dislocations*) y su contribución al endurecimiento incluso en presencia de pequeñas cantidades de hidrógeno. Como consecuencia, existe cierto concenso en incorporar el efecto de escala en la modelización de la fractura asistida por hidrógeno considerando las teorías de los gradientes de deformación plásticas (*SGP, Strain Gradient Plasticity*) en la modelización numérica [2]. Se constata también la necesidad de definir mejor las condiciones entre 0.1-5 μm de la punta de grieta, donde las dislocaciones, la química y la microestructura dominan el comportamiento del material [58].

Los modelos numéricos de fragilización por hidrógeno más actualizados conllevan enfoques basados en la incorporación de múltiples tipos de trampas [59], el efecto del hidrógeno en la densidad de las trampas y en la velocidad de las dislocaciones como mecanismo adicional del transporte del hidrógeno hacia la punta de grieta [60] y la influencia de las dislocaciones geoméricamente necesarias

en la predicción del umbral del factor de intensidad de tensiones K_{TH} y la velocidad de crecimiento de grietas subcríticas en ambientes corrosivos en presencia de hidrógeno [6].

El estudio numérico del proceso de agrietamiento asistido por hidrógeno ha hecho uso en numerosas ocasiones de lo que se conoce como modelos de fisura cohesiva (ver [61]). Especialmente atractivas son las formulaciones de los modelos de fisura cohesiva hidrógeno-dependientes en el marco del mecanismo HEDE propuestas por Serebrinshy et al. [10], Sheider et al. [14]; Alvaro et al. [12,13]. Para el estudio del inicio y de la propagación de grietas en fatiga destaca el trabajo de Gilbert Hénaff et al. [15].

1.1.2. Modelos de zona cohesiva

El concepto de zona cohesiva fue introducido por Dugdale [62] y Barenblatt [63] en la década de 1960 con el objetivo de aproximar el proceso no lineal que tiene lugar en la zona del proceso de fractura (FPZ, *Fracture Process Zone*) evitando así recurrir a la singularidad tensional de la mecánica de la fractura elástico lineal en el medio continuo. La zona dañada o zona cohesiva se representa mediante una fisura ficticia donde la fuerza cohesiva que actúa sobre ambas superficies impide la propagación de la grieta. El comportamiento del material cohesivo se describe a través de una relación constitutiva, ley tracción-separación, que relaciona las tracciones que actúan en la interfaz cohesiva y el salto en el desplazamiento entre las caras de la interfaz cohesiva denominado separación [64]. En la Fig. 1.8 se observa que la singularidad tensional propia de la mecánica de la fractura elástico lineal es reemplazada por una distribución de tensiones más realista a lo largo de la zona del proceso de fractura o zona cohesiva.

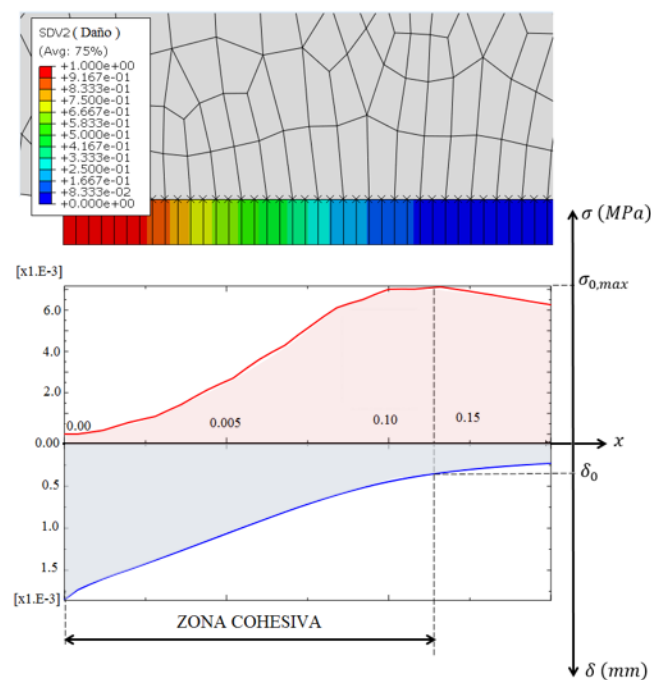


Figura 1.8: Simulación numérica del comportamiento del material cohesivo en modo I de carga (tracción, tensión cohesiva máxima, separación correspondiente).

En los modelos de fisura cohesiva, la curva de ablandamiento es una propiedad del material y representa la relación que existe entre la tensión transmitida entre ambas caras de la fisura y la separación una vez iniciado el daño. Las propiedades de la función de ablandamiento más relevantes son la resistencia a la tracción del material $\sigma_{max,0}$ y la energía específica de fractura cohesiva Γ_0 . El máximo de la curva de ablandamiento está controlado por la resistencia cohesiva del material $\sigma_{max,0}$ que representa la tensión a la cual la grieta es creada y comienza a abrirse. La energía específica de fractura cohesiva Γ_0 es una constante que representa el trabajo externo necesario para generar una superficie fisurada de área unitaria [65].

El hecho de poder describir el proceso de fractura únicamente con dos parámetros que pueden ser deducidos de forma experimental, convierte a los modelos de zona cohesiva en una herramienta muy interesante [66]. Para la determinación de los parámetros cohesivos se emplean ensayos experimentales y modelos micromecánicos, y en ocasiones dadas las dificultades inherentes al proceso de determinación de la curva de ablandamiento se recurre al ajuste paramétrico de los resultados experimentales. En la guía práctica de A. Cornec y I. Scheider se proponen una serie de métodos para la determinación experimental de los parámetros cohesivos del material que caracterizan la ley cohesiva, tensión cohesiva $\sigma_{max,0}$ y energía cohesiva Γ_0 que se corresponde con el área bajo la ley tracción-separación [66].

Otro parámetro importante es la longitud característica del material l_{ch} [67], ya que al estar relacionada con el tamaño de la zona del proceso de fractura restringe el tamaño máximo del elemento finito para trabajar con elementos cohesivos. Es función del módulo de elasticidad del material E , la energía específica de fractura cohesiva Γ_0 , y la resistencia a tracción del material $\sigma_{max,0}$ (1.4).

$$l_{ch} = \frac{E \cdot \Gamma_0}{\sigma_{max,0}^2} \quad (1.4)$$

La formulación de los modelos cohesivos bajo condiciones de carga monotónica está bien documentada por Brocks et al. [68]. Una vez se han determinado los parámetros cohesivos, la elección de la ley del comportamiento del material en la zona cohesiva es clave a la hora de aplicar los modelos de fisura cohesiva.

La influencia de la forma de la ley tracción-separación en el comportamiento a fractura del material no está exenta de cierta controversia; Scheider y Brocks [69] encontraron una influencia significativa en los resultados, al contrario que Tvergaard y Hutchinson [70].

A lo largo de los años se han utilizado diversas leyes cohesivas, en función del material o la aplicación a analizar, bilineal, trapezoidal, polinómica, exponencial entre otras [67, 69–73] (ver Fig. 1.9). Entre las leyes cohesivas más populares para metales se encuentran la propuesta por Tvergaard y Hutchinson [70] y la ley exponencial de Xu y Needleman [71] utilizada posteriormente para materiales dúctiles por Siegmund y Brocks [74]. Dado que por razones numéricas se prefiere las leyes cohesivas polinómicas y exponenciales por ser continuas y derivables, la ley exponencial de Xu y Needleman [71] adquirió gran popularidad. El hecho de que las tensiones cohesivas normal y tangencial sean obtenidas por derivación de la función potencial cohesiva, continua y derivable, facilitó el estudio de la propagación de grietas bajo condiciones dinámicas llevado a cabo por Ortiz y Pandolfi [75].

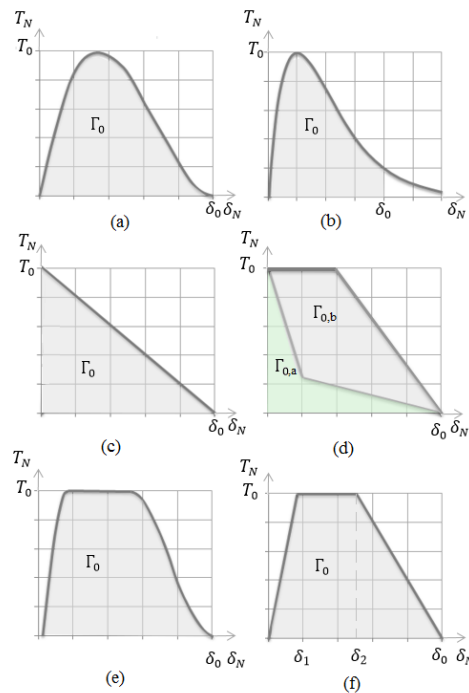


Figura 1.9: Leyes tracción-separación más populares: (a) Needleman [76], (b) Xu y Needleman [71], (c) Hillerborg [67], (d) Bazant [73], (e) Scheider y Brocks [69], (f) Tvergaard and Hutchinson [70].

Es importante tener en cuenta que la existencia en la ley cohesiva de una pendiente finita antes del inicio del daño no tiene sentido físico y se establece en base a criterios numéricos con el fin último de facilitar la implementación en un código de elementos finitos. Sin embargo, los valores de inicio del daño y la curva de ablandamiento son parámetros puramente fenomenológicos y deben de ser analizados para cada material y fenómeno correspondiente.

Los modelos de fisura cohesiva permiten simular la iniciación y propagación de una grieta sin necesidad de que el elemento esté preagrietado, así como la fractura de los materiales sin necesidad de un criterio explícito de fractura. Sin embargo, el uso generalizado de los modelos de fisura cohesiva para el análisis del comportamiento en fractura de los materiales surgió a partir de su implementación por el método de los elementos finitos llevada a cabo por Hillerborg et al. para el análisis de materiales con comportamiento cuasi-frágil como el hormigón [67]. Es precisamente con el hormigón cuando los modelos de fisura ganaron popularidad como herramientas predictivas del inicio y propagación de grietas gracias a los trabajos de Elices et al. [65], Planas et al. [77] y Bazant [73].

La aplicación de los modelos de fisura cohesiva a los materiales metálicos ha sido llevado a cabo por Needleman [76,78], Tvegaard y Hutchinson [70,79,80], y Tvegaard [81]. Lin, Cornec et al. [82] aplicaron el modelo al análisis de la propagación de grieta. La idea de introducir un potencial para capturar la descohesión en el material fue aportada por Xu y Needleman [71] constituyendo un referente para la implementación numérica de los modelos de zona cohesiva.

El uso de los modelos de fisura cohesiva se extendió a otros procesos de daño con el objetivo de estudiar una gran variedad de fenómenos físicos. Así, Xu y Needleman [72] y Zavattieri y Espinosa [83] realizaron un estudio de la fractura dinámica. Rosa et al. introdujeron un modelo cohesivo dependiente del tiempo [84], Allen y Searcy aplicaron el modelo de fisura cohesiva al estudio de materiales viscoelásticos [85], Tijssens analizó el fenómeno del “crazing” en polímeros mediante la metodología basada en la superficie cohesiva de fractura [86], entre otros. Una recopilación de los modelos cohesivos bajo carga monotónica puede encontrarse en la guía práctica para la aplicación de los modelos cohesivos de K-H. Schwalbe et al. [87]; mientras que Park y Paulino [88] realizaron una revisión crítica de las diferentes leyes tracción-separación referenciadas en la literatura, poniendo

especial énfasis en el modelo de fisura PPR (*Park-Paulino-Roesler polynomial-based potential*) desarrollado por los autores para su aplicación en condiciones de modo mixto de carga.

Modelos cíclicos de zona cohesiva

Una revisión de los modelos cíclicos de zona cohesiva para la simulación del crecimiento de grietas en fatiga puede encontrarse en [64]. Un aspecto importante a considerar en todos ellos es lo que sucede después de la iniciación del daño. En la literatura se recogen distintos modelos para el comportamiento durante la descarga del material, como puede verse en la figura 1.10, asumiéndose ésta hacia el origen de coordenadas para materiales cuasi-frágiles [89–94] (ver Fig.1.10(a)), mientras que otros autores consideran una cierta separación residual [95,96] (ver Fig.1.10(b)). El tramo de descarga puede ser asumido lineal [89, 93–96] o no lineal [91,92] (ver Fig. 1.10(c)).

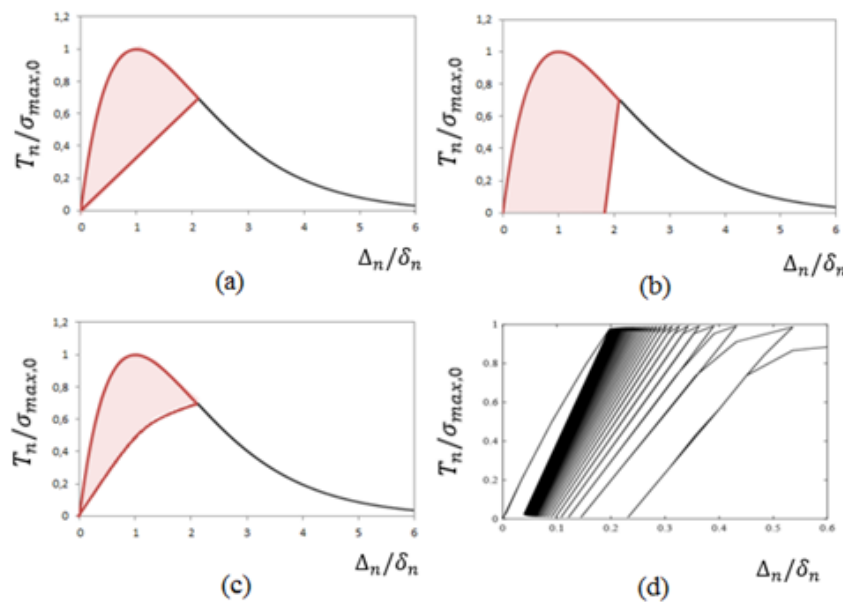


Figura 1.10: Leyes cohesivas con acumulación del daño durante la carga de fatiga: (a) Descarga lineal al origen de coordenadas [97], (b) Descarga lineal con separación residual [96], (c) Descarga no lineal al origen de coordenadas [92], (d) Ley tracción-separación cíclica bajo control por carga [96],

Mientras que en los modelos de zona cohesiva monotónicos el estado del daño está definido por la separación máxima, en fatiga la ley de evolución del daño considera además el límite de resistencia del material y otros parámetros adicionales del material incorporados con la ayuda de la función

escalón (Heaviside) [96]. En la literatura se pueden encontrar diferentes enfoques de la variable de daño [93, 96, 98].

Los estudios previos de Cleveringa et al. [99] y Deshpande et al. [100,101] demostraron el relevante papel de las dislocaciones en el proceso de crecimiento de grietas en fatiga. Riemelmoser y Pippan [102] demostraron la importancia de las dislocaciones geoméricamente necesarias (GNDs) en el crecimiento de grietas por fatiga y por ende la importancia de incorporar las teorías de los gradientes de deformación plástica (SGP) para computar el valor de las densidades de dislocaciones como la suma de las dislocaciones estadísticamente almacenadas (SSDs) y las dislocaciones geoméricamente necesarias (GNDs). Teniendo en cuenta todos estos factores y el modelo previo de la densidad de dislocaciones en función de los gradientes de deformación plástica de Brickmann [103], Brickmann y Siegmund [104] proponen un pionero modelo de zona cohesiva en fatiga basado en los micromecanismo de las dislocaciones (DDSG, *Dislocation Density Based Strain Gradient model*). Con este modelo consiguieron incorporar la influencia de las dislocaciones en la separación del material superando así las limitaciones en cuanto al número de ciclos y la restricción de la región de dominio a pocos micrometros del modelo de las dislocaciones discretas [99–101].

Aunque el crecimiento de grietas en fatiga incluyendo los efectos de la aplicación de sobrecargas durante cargas de amplitud constante ha sido investigado extensamente [89,93,95]; más allá de estas condiciones de carga no hay estudios que clarifiquen la interdependencia entre la velocidad de propagación de grietas y las propiedades de los modelos de zona cohesiva [64].

Es importante hacer referencia a los métodos recogidos en la literatura para solventar los problemas de convergencia inherentes a los modelos de fisura atribuidos al ablandamiento. Un método para mejorar la convergencia es la utilización de algoritmos de control, donde la carga se aplica prescribiendo una variable que incremente monotónicamente durante la historia de carga, pudiendo considerarse la apertura de grieta [105]. Sin embargo, el algoritmo de control no se puede utilizar en el caso de cargas cíclicas. En estos casos es más apropiado facilitar la convergencia numerica mediante la técnica del coeficiente de regularización viscosa propuesta por Gao y Bower [106] teniendo en cuenta que para obtener resultados óptimos el coeficiente de viscosidad debe ser suficientemente pequeño [107].

Modelos de zona cohesiva hidrógeno-dependientes

La capacidad de los modelos predictivos de fisura cohesiva para predecir con precisión las consecuencias de la fragilización por hidrógeno en los componentes, materiales y estructuras es de vital importancia para facilitar el uso de los aceros de alta resistencia en el sector energético y contribuir así al desarrollo de las infraestructuras de almacenaje y distribución de los futuros sistemas energéticos. Mientras la mayoría de los estudios reproducen con fiabilidad los resultados experimentales todavía existen ciertas limitaciones [12,15].

Alvaro et al. [12], Olden et al. [13] desarrollaron un modelo de fisura cohesiva para condiciones de carga monotónica, donde se tiene en cuenta principalmente el mecanismo HEDE. Brocks et al. [108] incluyeron también la cinética de la superficie en la absorción del hidrógeno.

La ley tracción-separación en presencia de hidrógeno puede reformularse mediante la relación propuesta por Serebrinsky et al. [10], donde $\sigma_{max,0}$ es la tensión cohesiva en ausencia de hidrógeno, θ_H la cobertura de hidrógeno, y $\sigma_{max}(\theta_H)$ la tensión cohesiva crítica dependiente de esta última.

$$\frac{\sigma_{max}(\theta_H)}{\sigma_{max,0}} = 1 - 1.0467\theta_H + 0.1687\theta_H^2 \quad (1.5)$$

Donde θ_H se define como una función de la concentración de hidrógeno C y la energía libre de Gibbs Δg_b^0 a partir de la isoterma de Langmuir-McLean:

$$\theta_H = \frac{C}{C + \exp\left(\frac{-\Delta g_b^0}{RT}\right)} \quad (1.6)$$

En la figura 1.11 se representa la ley tracción-separación en función de la concentración de hidrógeno expresada en wppm obtenida a partir de la ecuación (1.6) para $\Delta g_b^0 = 30$ kJ/mol y $T = 298$ K. Se observa el decrecimiento gradual de energía de fractura al aumentar el contenido de hidrógeno para la ley cohesiva exponencial de Xu y Needleman.

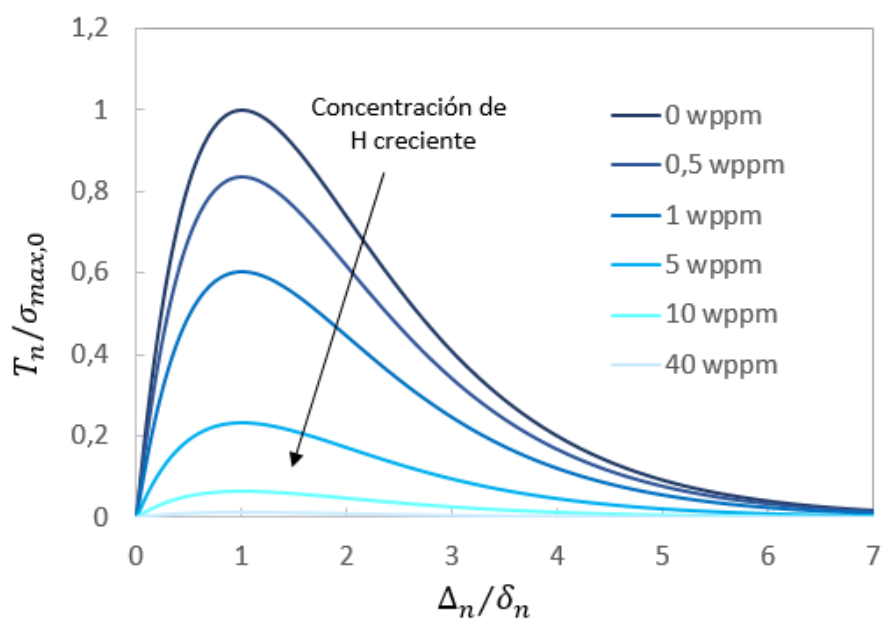


Figura 1.11: Efecto de la concentración de hidrógeno en la ley tracción-separación que caracteriza el comportamiento cohesivo.

La mayoría de los intentos para capturar la fragilización inducida por el hidrógeno mediante modelos de fisura cohesiva han sido aplicados para carga monotónica. Sin embargo muchos de los componentes estructurales en la industria trabajan bajo cargas de fatiga. El pionero trabajo de Moriconi et al. [15] recoge una serie de experimentos y simulaciones numéricas en el marco de la teoría de plasticidad convencional, con el objetivo de investigar el papel del hidrógeno en el acero martensítico 15-5PH utilizado para el almacenaje del hidrógeno gaseoso bajo condiciones de fatiga. Las predicciones numéricas concuerdan bien con los datos experimentales para presiones bajas de hidrógeno pero fallan a la hora de capturar el perjudicial efecto del hidrógeno en la propagación de grietas por fatiga para altas presiones de hidrógeno.

Otro ingrediente fundamental es el llamado efecto plástico de escala, asociado a gradientes de deformación plástica. Martínez-Pañeda et al. [109] mostraron una influencia relevante de los gradientes de deformación plástica en un amplio rango de problemas de fractura, siendo de especial importancia en la modelización numérica del agrietamiento asistido por hidrógeno, donde la tensión hidrostática juega un papel central en la descohesión de la interfaz y en la difusión del hidrógeno.

Modelos de zona cohesiva para la modelización del daño en entallas

Los fallos catastróficos a partir de pequeños defectos de componentes estructurales han motivado numerosos estudios teóricos y experimentales para la evaluación de la fractura frágil en presencia de entallas (ver, por ejemplo, la revisión realizada por Ayatollahi et al. [110]). La aplicación de los modelos de zona cohesiva para la modelización del daño en entallas, con el objetivo de desarrollar un criterio de fractura para probetas entalladas fue investigada por Gómez y Elices [111,112], extendiéndose posteriormente el estudio a materiales elástico lineales [113]. Olden et al. [114] investigaron la fragilización por hidrógeno en probetas entalladas mediante una formulación cohesiva dependiente del contenido de hidrógeno. Más recientemente, Cendón et al. [115] evaluaron la capacidad del modelo de fisura cohesiva embebida para predecir la carga crítica en probetas entallados en U y en V con diferentes radios en el fondo de la entalla, fabricadas en grafito policristalino de grano grueso. Sin embargo, la totalidad de los estudios que han tenido lugar se restringen al uso de modelos convencionales.

1.1.3. Teorías de gradientes de deformación plástica

La aparición de la microelectrónica ha impulsado el desarrollo de las teorías de los gradientes de deformación plástica en un amplia variedad de materiales metálicos. Recientemente, el concepto de flexoelectricidad basado en la polarización de materiales ferroeléctricos mediante presión a escala nanométrica con el objetivo de generar información binaria, constituye un gran avance en el diseño de dispositivos de memoria al no perder la información bajo cortes del suministro eléctrico. El efecto de escala asociado con los gradientes de deformación plástica y su relación con el correspondiente gradiente de polarización han sido evaluados por W.S. Oates [116]. Aunque la consideración de los efectos de estos gradientes fue motivada en un principio por la microelectrónica, posteriormente se demostró también su significancia en problemas de fractura [29,117,118], fatiga [104,119], fragilización por hidrógeno [6], plasticidad inducida por deformación en aceros multifase TRIP [120], delaminación en materiales compuestos microreforzados [121], fricción y contacto [122,123], análisis de materiales porosos [124], y evaluación del daño en procesos de carga dinámica [125], entre otros.

La existencia de una longitud intrínseca del material asociada al efecto de escala ha sido demostrada gracias a la simulación directa de las dislocaciones [125] y a partir de microensayos tales como flexión [57], torsión [55] o nanoindentación [56]. Los experimentos han demostrado la relevancia del efecto de escala en los materiales metálicos cuando la deformación plástica es confinada en un volumen pequeño, poniendo de manifiesto que cuando más pequeño es el tamaño más duro es el material (*smaller is stronger*).

Los gradientes de deformación plástica pueden ser causados por la geometría de la deformación (Fig 1.12(a,b)), como es el caso de una viga solicitada a flexión o un cilindro solicitada a torsión; por las condiciones locales de contorno (Fig 1.12(c,d)), como en el caso de los ensayos de dureza y en la zona plástica de la punta de grieta; y por la microestructura específica del material, donde se incluyen resultados obtenidos mediante la técnica EBSD con la distribución y orientación de los gradientes de deformación plástica en las fronteras del grano (ver [126]) (Fig 1.12(e)) [55].

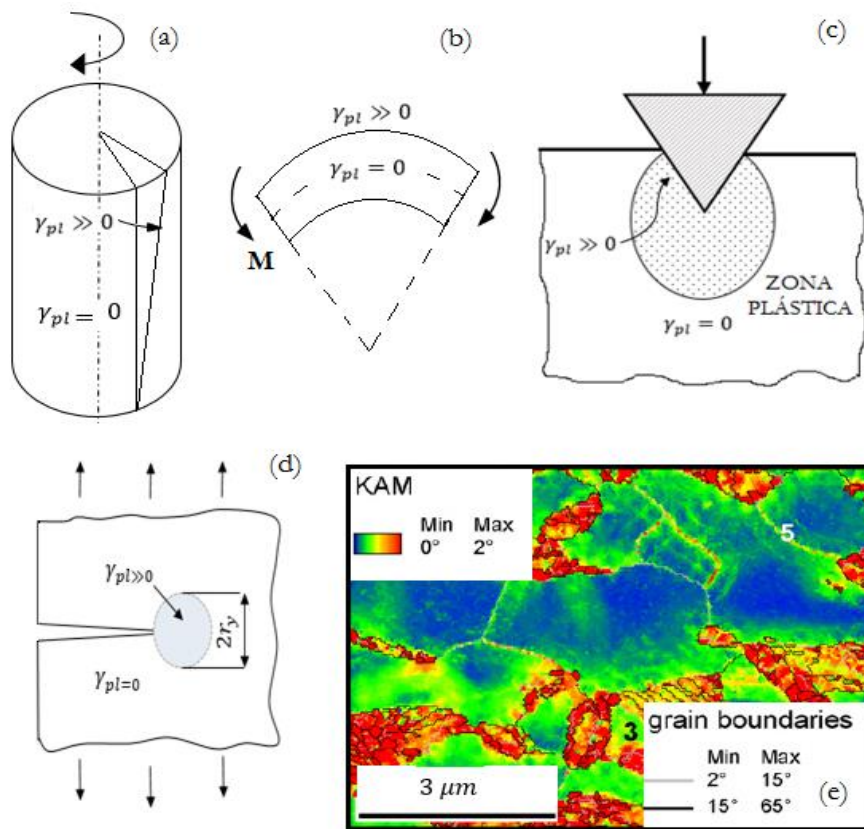


Figura 1.12: Gradientes de deformación plástica causados por la deformación de la geometría (a,b), por las condiciones de contorno (c,d) o por la microestructura específica del material (e). Adaptada de [55].

Las teorías de los gradientes de deformación plástica están basadas en el concepto de las dislocaciones geoméricamente necesarias, que puede ser explicado mediante un sencillo ejemplo consistente en una viga de metal sometida a flexión. Debido a la deformación plástica no uniforme en la viga, se necesita una aportación extra de dislocaciones para acomodar su curvatura (Fig 1.13). Estas dislocaciones denominadas “geoméricamente necesarias” no contribuyen generalmente a la deformación plástica pero si actúan como obstáculos al movimiento de las dislocaciones estadísticamente almacenadas, y por ende contribuyen al endurecimiento del material. Para generalizar estas ideas, siempre que exista deformación plástica no uniforme habrá asociada la necesidad de un almacenaje extra de defectos. Estos defectos se manifiestan cuando la longitud característica de la deformación es suficientemente pequeña. Esta es la idea básica de las dislocaciones geoméricamente necesarias [127,128].

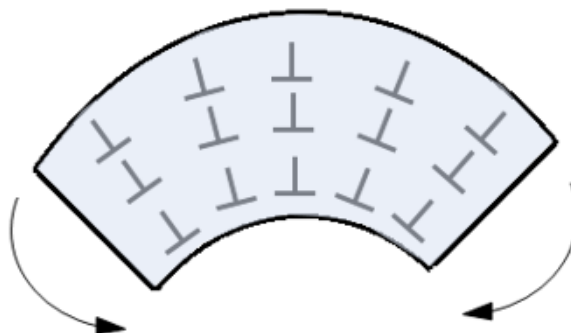


Fig 1.13: Dislocaciones Geométricamente Necesarias en una viga de metal doblada con deformación plástica no uniforme. Adaptada de [127].

Las formulaciones de las teorías basadas en los gradientes de deformación plástica introducen uno o varios parámetros para capturar las observaciones experimentales del efecto de escala. La determinación de esta longitud interna no está exenta de controversia dada la falta de procedimientos experimentales que establezcan una correlación inequívoca con la interpretación física de esta magnitud y la microestructura del material [129].

En las teorías de los gradientes de deformación plástica, la longitud interna de escala se introduce como un parámetro fenomenológico que es determinado mediante ajuste con los resultados experimentales de los microensayos [129]. Son varios los autores que acotaron el rango de valores de este parámetro, estando comprendido en el intervalo [1-10 μ m] [55–57, 130–132]. Recientemente, Zang y Aifantis [129] realizaron una completa revisión de la interpretación de la longitud interna de escala en el marco de las teorías de los gradientes de deformación plástica.

Una serie de teorías de los gradientes de deformación plástica han sido formuladas con el objetivo de capturar el efecto tamaño en materiales isotrópicos. Se clasifican como fenomenológicas (Fleck y Hutchinson; Niordson and Hutchison; Gudmunson; Gurtin; Gurtin y Anand, Acharya y Bassini) [133–140] o basadas en micromecanismos (Gao et al.; Huang et al.) [141,142]. Por otra parte, estas teorías pueden clasificarse como teorías de alto orden (ver [135]), que incorporan tensiones y condiciones de contorno adicionales de orden superior, y teorías de bajo orden, en las que existe una

interdependencia entre los gradientes de deformación y el módulo de plasticidad, con lo que las ecuaciones de equilibrio y las condiciones de contorno son las mismas que en plasticidad convencional (ver [143]). Ver Tabla 1.1 con la clasificación de las teorías de los gradientes de deformación plástica.

	Phenomenological	Micromechanical-based
Higher Order	Fleck-Hutchinson (Fleck and Hutchinson, 1993, 1997, 2001) [See also: Gudmunson (2004), Gurtin (2004), Gurtin and Anand (2009), etc.]	Mechanism-Based Strain Gradient Plasticity (MSG) (Gao et al., 1999)
Lower Order	Acharya and Bassani (1996) Bassani (2001)	Conventional Mechanism- Based Strain Gradient Plasticity (CMSG) (Huang et al., 2004)

Tabla 1.1: Clasificación de las teorías de los gradientes de deformación plástica.

Gudmunson [137] fue el primero en observar que la teoría fenomenológica del modelo de Fleck y Hutchinson [135], no siempre satisface los requerimientos termodinámicos de la disipación plástica. Para solucionar este problema, Gudmunson [137] y Gurtin y Anand [139] propusieron un nuevo modelo que incorpora tensiones de orden superior con criterios energéticos y disipativos. Una reformulación del modelo de Fleck y Hutchinson se puede encontrar en [144].

Parece claro que la teoría de la plasticidad convencional no es capaz de predecir las observaciones experimentales al no incorporar la longitud intrínseca del material en las ecuaciones constitutivas [127]. Otro factor a tener en cuenta es que dado que la zona plástica adyacente a la punta de grieta es físicamente pequeña y por ende contiene fuertes gradientes espaciales de deformación asociados con

la deformación plástica no uniforme, la modelización de la fractura [29,117], fatiga [94,104], fragilización por hidrógeno [6], considerando el efecto de escala parece ser ineludible (ver Fig 1.12(d)). Las observaciones experimentales de fractura por clivaje en presencia de flujo plástico significativo [145,146], han contribuido a reforzar el interés en el papel de los gradientes de deformación plástica en fractura y evaluación del daño.

Jiang et al. [142] investigaron los campos tensionales en la punta de grieta mediante la teoría de los gradientes de deformación basados en mecanismos (*MSG, mechanism-based strain gradient plasticity*) basado en el modelo de dislocaciones de Taylor. Su investigación reveló que las **GNDs** en las proximidades de la punta de grieta promueven el endurecimiento por deformación y por ende conducen a tensiones mucho más elevadas que aquellas predichas por la plasticidad convencional. Qu et al. [141] implementaron la teoría convencional de orden inferior basada en micromecanismos (*CMSG, Conventional Mechanism Strain Gradient Plasticity*) y encontraron que las condiciones de contorno de orden superior no afectan a los campos de tensiones y deformaciones para una distancia mayor de 10 nm más allá de la punta de grieta, límite bastante más bajo que la validez de las teorías **SGP** basadas en el modelo de las dislocaciones de Taylor [141]. El límite de validez física del modelo es de 100nm.

El estudio paramétrico de la influencia de los gradientes de deformación plástica llevado a cabo por Martínez-Pañeda y Betegón (2015) [147] y más recientemente Martínez-Pañeda y Niordson (2016) [148], tanto en el marco de la teoría infinitesimal como en el marco de la teoría de las deformaciones finitas, muestra que la longitud física dentro de la cual la consideración de los gradientes de deformación plástica afectan a los campos tensionales puede abarcar varios micrometros, reforzando así la necesidad de incorporar los efectos de las **GNDs** en la modelización de la fractura asistida por hidrógeno. Aunque los resultados obtenidos para la teoría de las deformaciones infinitesimales muestran que el efecto del gradiente de deformación plástica es insignificante para los elevados valores del límite elástico comunes a los aleaciones de alta resistencia, las diferencias en los campos tensionales con respecto a la teoría continua de plasticidad convencional son relevantes cuando se consideran grandes deformaciones [147]. Además es importante destacar que el daño por hidrógeno ocurre muy cerca de la punta de grieta, siendo la distancia crítica donde la magnitud de la elevación de la tensión es significativa menor que 1 μm [36].

El efecto plástico de escala podría degradar con severidad la resistencia a la fractura de los aceros de alta resistencia, ampliamente utilizados en las infraestructuras relacionadas con el aprovechamiento del hidrógeno como fuente de energía. En la figura 1.14 se observa que para el acero de alta resistencia Aermet100, la tensión hidrostática y la densidad de GNDs es elevada en un rango de 1 a 20 μm en torno a la punta de grieta, sugiriendo que los gradientes de deformación plástica juegan un papel relevante en la fractura asistida por hidrógeno [6].

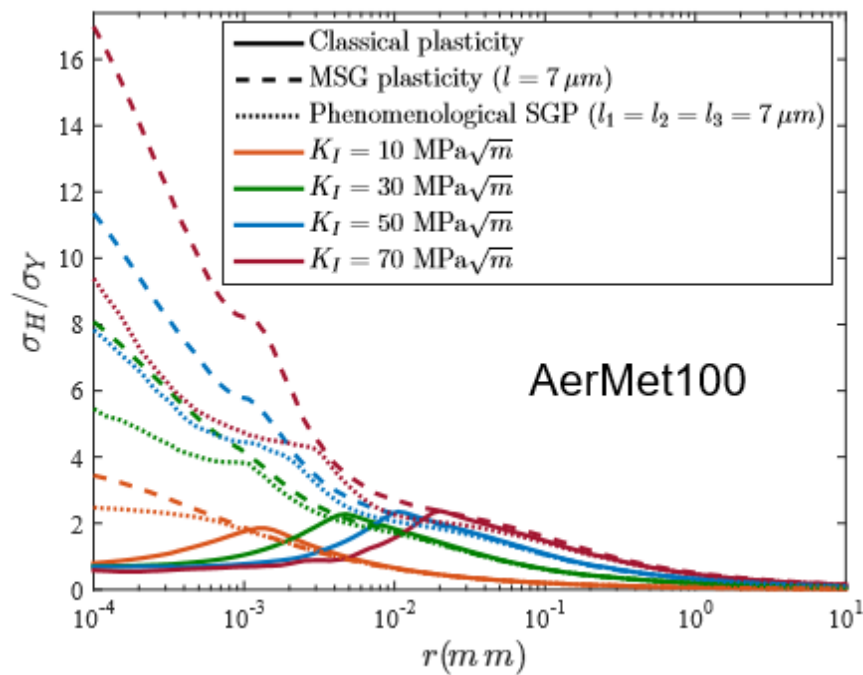


Fig 1.14: Resultados numéricos de σ_H/σ_Y versus distancia a la punta de grieta, r , para el rango de K_I utilizado en los experimentos en HEAC con AermetTM100. Teorías incluyen: SGP ($l = 7 \mu\text{m}$), PSGP ($l_1 = l_2 = l_3 = 7 \mu\text{m}$), y plasticidad convencional. Adaptada de [6].

1.2. Motivación

La fragilización por hidrógeno es un problema muy antiguo que a día de hoy sigue comprometiendo la seguridad de muchos componentes e instalaciones industriales, en especial en la industrial petroquímica. Además, el fuerte incremento del consumo energético mundial y la dependencia del petróleo han contribuido a potenciar el desarrollo de la emergente economía del hidrógeno. La seguridad en los depósitos de hidrógeno a alta presión y del sistema de tuberías en la estación de reabastecimiento de hidrógeno como combustible, es uno de los retos a alcanzar para asegurar la viabilidad de la sostenibilidad en los sistemas de transporte basados en vehículos impulsados mediante la pila de combustible, donde el binomio precio y bajo peso es uno de los mayores requerimientos.

El almacenaje de hidrógeno gaseoso presurizado es el método más popular y más desarrollado por su simplicidad técnica, con la ventaja de que el hidrógeno puede ser almacenado a temperatura ambiente [149]. Los materiales utilizados para la fabricación de depósitos a presión deben ser capaces de prestar servicio durante largos periodos de tiempo, en contacto directo con un ambiente de hidrógeno de alta pureza (>99.9 % como se especifica en ISO 14687-2) y en condiciones de operación sometidos a muy altas presiones (por encima de los 87.5 MPa). Los aceros austeníticos (ej. Acero austenítico 316L [150]) con un alto contenido en Ni y una buena resistencia a la fragilización de hidrógeno son ampliamente utilizados. Su alto coste hace deseable llegar a poder utilizar con garantías otros aceros con menos porcentaje de Ni en su composición [149].

Muchos esfuerzos han sido realizados por la comunidad científica para entender los efectos del hidrógeno en los materiales metálicos dando lugar a numerosos modelos teóricos y numéricos, así como ensayos experimentales. Entre los modelos numéricos predictivos, los modelos de zona cohesiva para el estudio de la propagación de grietas en ambientes de hidrógeno constituyen una potente herramienta, aunque con algunas limitaciones [61]. Sin embargo, el desarrollo de modelos numéricos predictivos que respondan con eficacia en la predicción de los efectos de la fractura y fatiga asistida por el ambiente considerando la naturaleza de la carga aplicada, las propiedades del material y las condiciones del ambiente, aplicados a la industria y en especial a la economía del hidrógeno, donde un modelo robusto para la evaluación de la vida en fatiga con el objetivo de reducir

peso y coste en el diseño de vehículos impulsados con hidrógeno sin comprometer su seguridad es una prioridad [151], sigue siendo uno de los grandes hitos de nuestro tiempo [152].

Para mejorar la capacidad predictiva de los modelos numéricos, incluir el efecto plástico de escala en la modelización numérica parece ineludible [147,148]. Además, debe abordarse las posibles implicaciones del efecto de los gradientes de deformación plástica, no solo en grietas, sino también en defectos de tipo entallas, inherentes al proceso de fabricación o a las condiciones de servicio.

1.3. Estructura de la Tesis

El primer capítulo, **Introducción**, presenta el problema del agrietamiento asistido por hidrógeno en los materiales metálicos, de gran relevancia en la industria y en la ingeniería, y sobre todo en el sector energético. La fundamentación del marco teórico para una correcta concreción del problema de la fragilización por hidrógeno se lleva a cabo estableciendo los *antecedentes* de la investigación en base a la revisión actualizada de la bibliografía y por ende la *motivación* para la presente investigación en base a las controversias y limitaciones detectadas. La recopilación bibliográfica se ha dividido en tres grandes bloques:

- Agrietamiento asistido por hidrógeno.
- Modelos de zona cohesiva.
- Teorías de los gradientes de deformación plástica.

Tras sentar los antecedentes y detectar las necesidades referentes a los modelos de fragilización por hidrógeno, en el capítulo **Objetivos** se establece de forma clara y concisa el objetivo general de la presente investigación, así como los objetivos específicos relacionados.

El capítulo **Discusión de Resultados** complementa las discusiones presentadas en cada una de las publicaciones del compendio, con el objeto de dar una visión globalizadora e integradora del trabajo de investigación realizado.

En el capítulo de **Conclusiones** se recogen las conclusiones integradoras a destacar como síntesis de los artículos que constituyen el compendio de publicaciones de la tesis; así como las directrices a seguir para el trabajo futuro.

Al tratarse de una Tesis Doctoral presentada bajo la modalidad de compendio de publicaciones, en el capítulo **Publicaciones** se recogen los artículos publicados en revistas de alto impacto que componen el conjunto del trabajo de investigación desarrollado.

2. *Objetivos*

Comprender los mecanismos implicados en la fragilización por hidrógeno y desarrollar modelos predictivos fiables y precisos para la evaluación de la integridad estructural de los componentes, materiales y estructuras es un campo de gran interés para la ciencia y la ingeniería. Consecuentemente, el objetivo general de la presente tesis doctoral es:

<<Desarrollar un modelo numérico de zona cohesiva, capaz de predecir de forma cuantitativa el inicio y la propagación de grietas en ambientes agresivos bajo cargas monotónicas y cíclicas; y que verifique el principio de transferibilidad para su implementación en entornos industriales reales>>.

Para lograr la consecución del objetivo general se concretizan los siguientes objetivos específicos:

- **V**alorar la capacidad predictiva de los *modelos de zona cohesiva* en el marco de la plasticidad convencional para capturar la degradación del material y el fallo debido a cargas cíclicas en ambientes agresivos, evaluando su idoneidad para capturar cualitativamente las tendencias y observaciones experimentales de inicio y crecimiento de grietas por fatiga de gran relevancia para el almacenaje y el transporte del hidrógeno.
- **C**uantificar la influencia de *las teorías de plasticidad que consideran los gradientes de deformación plástica* en la difusión del hidrógeno hacia la punta de grieta, y su implicación en la fractura asistida por hidrógeno contribuyendo a la eficiente correlación cuantitativa entre las predicciones numéricas y experimentales.
- **A**cotar el dominio de *las teorías de plasticidad que consideran los gradientes de deformación plástica* evaluando también su influencia en sólidos entallados dado que los ensayos estandarizados de fractura asistida por hidrógeno se realizan tanto en especímenes agrietados como entallados; y los defectos tipo entalla inherentes al proceso de corrosión son preferenciales a la hora de iniciación de grietas.

3. Discusión de resultados

3.1. Publicación A

Tal y como se ha descrito en la sección 1.1.2, la gran mayoría de estudios de fragilización por hidrógeno están restringidos a condiciones de carga monotónica, a pesar de que gran parte de los componentes industriales experimentan cargas periódicas en condiciones de servicio. Recientemente, Moriconi et al. [15] han llevado a cabo una serie de experimentos y simulaciones numéricas para investigar el comportamiento del acero martensítico 15-5PH usado para el almacenaje del hidrógeno gaseoso. Las predicciones numéricas concuerdan bien con las observaciones experimentales para bajas presiones, pero fallan al intentar capturar el perjudicial efecto del crecimiento de grietas por fatiga a altas presiones.

El trabajo investigador en primer lugar ha sido orientado a comprender el papel acelerador del hidrógeno en la velocidad de crecimiento de grietas bajo cargas de fatiga, ya que podría ser crucial para poder emplear los aceros de alta resistencia en el sector energético (ver sección 2, objetivo específico N° 1). La sección 5.1 recoge la publicación titulada *A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue*, donde se ha desarrollado un modelo numérico para predecir la fatiga asistida por hidrógeno por medio de una formulación de zona cohesiva y construido en base a: (i) unas condiciones de contorno específicas de ambientes en presencia de hidrógeno, (ii) la difusión del hidrógeno acoplada con tensión conducida por los gradientes de potencial químico, (iii) el comportamiento mecánico basado en la teoría de Plasticidad J2 en deformaciones finitas, (iv) un modelo de trampas fenomenológico, (v) una formulación del modelo irreversible de zona cohesiva propuesto por Roe y Siegmund [96], y (vi) una ley tracción separación dependiente de la cobertura de hidrógeno [10].

El modelo numérico se ha implementado en el software comercial de elementos finitos ABAQUS por medio de subrutinas de usuario. Se ha utilizado una formulación de contorno, donde la región de la grieta se ha modelizado mediante un dominio circular (ver sección 5.1, apartado 3). El postproceso de los resultados se ha llevado a cabo en MATLAB haciendo uso de la herramienta Abaqus2Matlab (ver sección 5.1, apartado 2.3) [153]. A continuación, se realiza una discusión de los

resultados obtenidos en el proceso de valoración de la idoneidad del presente modelo de zona cohesiva para el estudio de la fatiga asistida por el ambiente, haciendo hincapié en las necesidades detectadas y las posibles propuestas para mejorar su capacidad predictiva. Es preciso mencionar que antes de valorar las capacidades del modelo numérico desarrollado, se realizó la validación de la implementación de la difusión acoplada con tensión bajo carga monotónica y grieta estacionaria con las predicciones de Sofronis y McMeeking [7]; así como la implementación del modelo cíclico de zona cohesiva con las predicciones de Roe y Siegmund [96].

La capacidad predictiva del modelo de zona cohesiva para capturar la velocidad de crecimiento de grietas por fatiga en presencia de hidrógeno es evaluada teniendo en cuenta una serie de parámetros referidos a la agresividad del ambiente, factores condicionantes de la carga de fatiga, el material empleado y la triaxialidad de tensiones. La elección de estos factores es justificada en el proceso de discusión de los resultados obtenidos.

Influencia del ambiente

La evaluación del efecto de la agresividad del ambiente se llevó a cabo comparando los resultados obtenidos en un ambiente inerte y en un ambiente agresivo donde el rango de concentraciones de hidrógeno va desde 0.1 wppm a 1 wppm, correspondiente a una solución acuosa de NaCl al 3% [154]. El material considerado en primer lugar se corresponde con una aleación base hierro con un límite elástico $\sigma_Y = 250$ MPa. La frecuencia $f = 1$ Hz y la relación de tensiones $R = 0.1$ que es típica de los ciclos de llenado de hidrógeno en los vehículos impulsados con pilas de combustible, caracterizan la carga de fatiga aplicada.

Los resultados revelan una fuerte influencia del ambiente, con un acusado incremento de las velocidades de crecimiento de grieta con el contenido de hidrógeno (ver Figura 7(a), sección 5.1, apartado 3).

Haciendo uso de la ecuación de Paris (3.1) se puede ver que el coeficiente C se incrementa significativamente con el contenido de hidrógeno en el ambiente, en concordancia con los resultados experimentales. Sin embargo el coeficiente m muestra poca sensibilidad a la concentración de hidrógeno y es del mismo rango que los resultados experimentales reportados en la literatura para

metales en ambiente inerte ($m \approx 4$). Para una frecuencia dada, la pendiente de la curva da/dN vs ΔK muestra una fuerte dependencia de las propiedades mecánicas y de difusión del material bajo consideración (ver Figura 7(b), sección 5.1, apartado 3).

$$\frac{da}{dN} = C \cdot \Delta K^m \quad (3.1)$$

Influencia de la frecuencia f de aplicación de la carga

La variable mecánica con más influencia en el proceso de crecimiento de grietas en ambientes agresivos es la frecuencia de aplicación de la carga. Cuando la frecuencia de la onda de fatiga es muy alta, el efecto del ambiente agresivo apenas es perceptible ya que los mecanismos de ataque no tienen tiempo de alcanzar el frente de avance de las fisuras. Cuando la frecuencia disminuye, el efecto es cada vez más perceptible, multiplicándose la velocidad de crecimiento de fisuras por factores de 2 a 5 [155]; con lo que la sensibilidad de la frecuencia f de los ciclos de la carga de fatiga y sus efectos en las curvas de crecimiento de grieta en un medioambiente agresivo se encuentra entre dos casos extremos: (a) ensayos lentos, donde el tiempo de duración del ensayo excede al tiempo de difusión del hidrógeno en la probeta, y (b) ensayos rápidos, donde el tiempo de duración del ensayo es mucho menor que el tiempo de difusión. Definiendo la frecuencia normalizada \bar{f} como

$$\bar{f} = \frac{f \cdot R_0^2}{\mathcal{D}} \quad (3.2)$$

Donde R_0 es la longitud plástica de referencia (ver Ecuación (40), sección 5.1, apartado 3) y \mathcal{D} es el coeficiente estándar de difusión. Las dos situaciones límites corresponden a ($\bar{f} \rightarrow 0$) para los ensayos lentos y ($\bar{f} \rightarrow \infty$) para los rápidos.

De acuerdo con lo esperado, la propagación de grietas en una aleación de base hierro con un límite elástico de $\sigma_Y = 250$ MPa, se ve favorecida en el caso de que el tiempo de duración del ensayo sea grande aunque, en contra de las observaciones experimentales, hay poca sensibilidad a la frecuencia de carga (ver Figura 8(a), sección 5.1, apartado 3). La baja susceptibilidad de la velocidad de crecimiento de grieta a la frecuencia de aplicación de la carga es debida a que la elevación de la

concentración de hidrógeno en la red obtenida en ambos ensayos C_L es menor que el 10% (ver Figura 8(b), sección 5.1, apartado 3). Teniendo en cuenta que el máximo de la tensión hidrostática σ_H es independiente de la carga en la teoría de plasticidad J2 en deformaciones finitas [7], se procede a investigar la influencia del límite elástico σ_Y , el coeficiente de endurecimiento del material n y la triaxialidad de tensiones con el objetivo de obtener una respuesta más acorde con las observaciones experimentales.

Influencia del límite elástico σ_Y

El papel del límite elástico es investigado considerando un acero de alta resistencia con un límite elástico $\sigma_Y = 1200 \text{ MPa}$ y el resto de las propiedades mecánicas las mismas que la aleación de base hierro. El efecto de la frecuencia de aplicación de la carga es más pronunciado (ver Figura 9(a), sección 5.1, apartado 3). La concentración de hidrógeno en la red es también mayor debido a que la elevación de la tensión hidrostática es bastante más pronunciada (ver Figura 9(b), sección 5.1, apartado 3).

La velocidad de crecimiento de grietas por fatiga es estudiada para un rango de frecuencias de 10^{-4} Hz a 10^4 Hz . El modelo numérico captura de forma cualitativa las principales tendencias de las observaciones experimentales; bajas frecuencias de carga facilitan el transporte del hidrógeno hacia la zona del proceso de fractura, aumentando la velocidad de propagación de grietas. Sin embargo, el límite superior de la velocidad de crecimiento de grieta correspondiente a las frecuencias más bajas es menos de 1.5 veces el valor de la velocidad de crecimiento de grieta correspondiente a las frecuencias más altas (ver Figura 10, sección 5.1, apartado 3). Si tenemos en cuenta que las observaciones experimentales de la velocidad de crecimiento de grieta a bajas frecuencias para el acero martensítico SCM435 sitúan la diferencia en torno a 5 – 10 veces [155] y que similares datos se han obtenido para el acero 2.25 Cr1Mo (SA542-3) utilizado en recipientes a presión [156], entre otros [155], parece ser que las estimaciones numéricas no predicen bien esta circunstancia. Es necesario proseguir con la investigación incorporando otros factores para mejorar la capacidad predictiva del modelo numérico.

Influencia del coeficiente de endurecimiento N

La influencia del coeficiente de endurecimiento N en la velocidad de crecimiento de grieta para un rango de frecuencias de 10^{-4} Hz a 10^4 Hz es analizado para N desde 0.1 hasta 0.3 en el caso del acero de alta resistencia con un límite elástico $\sigma_Y = 1200$ MPa. Elevados valores de N conduce a aumentar la velocidad de crecimiento de grieta, ya que coeficientes de endurecimiento altos conllevan tensiones más elevadas. Sin embargo, en el rango de frecuencias estudiado este efecto no es muy grande (ver Figura 11, sección 5.1, apartado 3). Podría entenderse que el aumento de las tensiones con N se ve compensado con la menor deformación plástica. En este sentido, hay que señalar que con la presente elección de parámetros cohesivos, la fractura tiene lugar sin un flujo plástico significativo. Aunque otra elección de parámetros cohesivos probablemente aumentará las diferencias entre los dos valores de N más extremos, es bastante improbable que sea suficiente para que exista concordancia con los resultados experimentales.

Influencia de las condiciones de constricción

Las condiciones de constricción en el frente de grieta pueden estar detrás de la elevación del estado tensional y por ende podrían jugar un papel esencial para aumentar suficientemente la velocidad de crecimiento de grieta en los ensayos lentos. Para su análisis se prescriben diferentes condiciones de triaxialidad en el frente de grieta por medio de formulaciones de contorno modificadas basadas en el parámetro elástico T [157]. Los resultados obtenidos indican un incremento sustancial en la velocidad de crecimiento de grieta al aumentar la constricción. Sin embargo, las diferencias entre la velocidad de propagación de grietas para los ensayos lentos y los rápidos son casi insignificantes, si se comparan con las observaciones experimentales (ver Figura 12, sección 5.1, apartado 3).

Se puede por tanto concluir que las observaciones experimentales de la elevación de 5 – 10 veces en la velocidad de crecimiento de grieta en los ensayos lentos con respecto a los ensayos rápidos no pueden ser justificadas en el marco de la teoría de la plasticidad convencional J2, donde el máximo de la tensión hidrostática σ_H (en torno a $5 \cdot \sigma_Y$) es insuficiente para que los niveles de hidrógeno causen un incremento de al menos 5 veces en la velocidad de crecimiento de grieta.

La velocidad de crecimiento de grieta se puede incrementar con el límite elástico, el coeficiente de endurecimiento o con las condiciones de constricción, sin embargo, incluso en la combinación más

3.1. Publicación A [*A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue*]

crítica de estos parámetros no es viable una concordancia a nivel cuantitativo con los resultados experimentales observados en un amplio rango de aleaciones metálicas. Fuentes adicionales de elevación de tensión deben ser consideradas para la fiable caracterización de la fatiga asistida por el ambiente para diferentes frecuencias. Como se ha visto en la revisión bibliográfica (ver sección 1.1) los gradientes de deformación plástica juegan un papel relevante en la elevación de los campos tensionales en las proximidades de la punta de grieta con tensiones mucho mayores que las obtenidas mediante la teoría de plasticidad J2.

3.2. *Publicación B*

Como ha quedado patente en la revisión bibliográfica (ver sección 1.1), parece esencial cuantificar la influencia de los gradientes de deformación plástica en el transporte del hidrógeno hacia la zona de fractura, y su implicación en la fractura asistida por hidrógeno contribuyendo a la eficiente correlación cuantitativa entre las predicciones numéricas y experimentales (ver sección 2, objetivo específico N° 2).

La sección 5.2 recoge la publicación titulada *Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip*, donde la difusión del hidrógeno hacia la zona de fractura es examinada, por primera vez, teniendo en cuenta el efecto plástico de escala. Con el objetivo de caracterizar los campos tensionales en las proximidades de la punta de grieta, capturando la elevación tensional debida a los gradientes y por ende sus implicaciones en el transporte del hidrógeno hacia las proximidades de la punta de grieta, se adopta la teoría fenomenológica de Fleck y Hutchinson [135] formulada en el marco de las deformaciones finitas siguiendo el trabajo de Niordson y Redanz [158].

A continuación, se realiza una discusión de los resultados que permitirá establecer conclusiones relevantes de cara a facilitar la comprensión del fenómeno de la fragilización por hidrógeno y de los mecanismos implicados. El papel de los gradientes en la difusión del hidrógeno es evaluado mediante el análisis de tres casos de interés: la modelización del transporte del hidrógeno en una aleación de base hierro siguiendo el pionero trabajo de Sofronis y McMeeking [7], la modelización del enromamiento de la punta de grieta y del análisis de difusión para un acero inoxidable dúplex inspirados en el trabajo de Olden et al. [13], y la modelización de la distribución de hidrógeno en la vecindad de una grieta en una tubería fabricada en acero X80 comparando con los resultados experimentales de Mao y Li [159].

Transporte del hidrógeno en una aleación de base hierro

Con el objetivo de validar el transporte del hidrógeno hacia la punta de grieta, se reproducen en primer lugar los resultados de plasticidad convencional del pionero trabajo de Sofronis y McMeeking [7], donde se establecieron las bases para el transporte del hidrógeno hacia la punta de grieta en

grandes deformaciones. Posteriormente se evalúa la influencia de los gradientes de deformación plástica en la modelización de la difusión de hidrógeno hacia la zona del proceso de fractura.

En primer lugar, se examinan los campos tensionales en la vecindad de la grieta para una aleación de base de hierro a partir de una formulación de contorno, donde la región de la grieta se modeliza mediante un dominio circular y la carga externa en modo I se aplica de forma remota en el contorno exterior del círculo por medio de desplazamientos impuestos en los nodos. Como condiciones iniciales y de contorno se definen, respectivamente, una concentración inicial c_0 [7] y una concentración prescrita en el flanco de la grieta como función de la tensión hidrostática siguiendo el concepto de potencial químico constante introducido por Di Leo y Anand [54] (ver Figura 1, Sección 5.2, apartado 3.1). El modelo numérico es implementado en el software de elementos finitos ABAQUS mediante subrutinas de usuario (ver Sección 5.2, apartado 3.1).

Los parámetros del material utilizado son: límite elástico $\sigma_Y = 250$ MPa, coeficiente de Poisson $\nu = 0.3$, módulo de Young $E = 207$ GPa y coeficiente de endurecimiento por deformación $N = 0.2$ de acuerdo con la ley de endurecimiento que reproduce el comportamiento del material según [7]. La longitud característica del material adoptada en las simulaciones numéricas es $l_1 = l_2 = l_3 = 5$ μm , un valor intermedio en concordancia con el rango de los valores reportados en la literatura [57]. Los resultados son obtenidos para una carga externa de $K_I = 89.7$ MPa $\sqrt{\text{m}}$.

La distribución normalizada de la tensión hidrostática σ_H en el frente de grieta para la plasticidad convencional y la teoría de los gradientes de deformación plástica muestra que la contribución de los gradientes de deformación plástica al endurecimiento por deformación del material suprime la reducción de tensiones a nivel local que tiene lugar en la vecindad de la grieta en la plasticidad convencional. Las predicciones de la teoría de los gradientes de deformación plástica concuerdan con la teoría de plasticidad J2 lejos de la punta de grieta, con diferencias significativas en las proximidades de la punta de grieta, donde la tensión hidrostática alcanza valores elevados en una distancia de varios micrómetros más allá de la punta de grieta debido al incremento en la densidad de las dislocaciones geoméricamente necesarias (GNDs) (ver Figura 3, Sección 5.2, apartado 3.1). La misma tendencia es observada para la tensión de apertura y por ende se pueden extraer similares conclusiones (ver Figura 4, Sección 5.2, apartado 3.1). Este hecho conlleva implicaciones relevantes

en la modelización del daño por hidrógeno, ya que la región donde se inicia el fenómeno de agrietamiento asistido por el ambiente estaría dentro del dominio de influencia de los gradientes de deformación.

La distribución de la concentración de hidrógeno en la red c_l en la vecindad de la grieta después de 1419 h, donde ya se puede considerar el régimen permanente [7,54] para $D = 1.27 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ y $c_o = 2.084 \cdot 10^{21} \text{ at H/m}^3$ [7] muestra que en plasticidad convencional se alcanza un máximo para $c_l/c_o \approx 2.7$ y que la concentración de hidrógeno decrece a partir de este máximo al aproximarse a la punta de grieta con una tendencia similar a la descrita por Di Leo y Anand [54]. Al contrario, en concordancia con la tendencia de la tensión hidrostática σ_H , la concentración de hidrógeno en la red se eleva significativamente en las proximidades de la punta de grieta cuando se tiene en cuenta los gradientes de deformación. Los resultados revelan que las dislocaciones geoméricamente necesarias (GNDs), ausentes en las predicciones de la plasticidad convencional, juegan un papel de suma relevancia en la difusión del hidrógeno (ver Figura 5, Sección 5.2, apartado 3.1).

Enromamiento de la punta de grieta y distribución del hidrógeno en acero inoxidable dúplex

El acero inoxidable dúplex (ferrítico – austenítico) con un 25% de Cr es ampliamente utilizado en la construcción de tuberías submarinas por su alta resistencia a la corrosión. Sin embargo, el acero inoxidable dúplex presenta alta susceptibilidad al agrietamiento asistido por hidrógeno incluso a bajos potenciales de protección catódica [13].

El papel de los gradientes de deformación en la difusión del hidrógeno es evaluada mediante la modelización numérica de una probeta tipo SENT bajo carga constante y condiciones de protección catódica de acuerdo con las condiciones establecidas en [13].

El análisis de difusión se realiza para dos niveles de carga, que se corresponden con una tensión en la sección neta de 480 y 600 MPa, o equivalentemente al 80 y 100% del límite elástico, teniendo en cuenta que las condiciones típicas de servicio de las tuberías submarinas están en el rango del 60 al 80% del límite elástico. Se asume una concentración constante de hidrógeno en la red en la superficie de 1 wppm, que se corresponde con las condiciones de los ensayos llevados a cabo por

Olden et al. [13]. Con el objetivo de evaluar la concentración de hidrógeno en la punta de grieta después de 200 h de exposición, se lleva a cabo un análisis de difusión transitorio. El coeficiente de difusión estimado es $D = 3.7 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (ver [13]). La concentración de hidrógeno en la red en la vecindad de la grieta considerando los gradientes de deformación plástica para una longitud característica de $l_i = 5 \mu\text{m}$ revela que la concentración de hidrógeno en la red se incrementa de forma significativa en un rango de $0.05 - 0.1 \text{ mm}$ desde la punta de grieta, donde la densidad de dislocaciones geoméricamente necesarias es elevada. Al aumentar la carga aplicada se incrementa el nivel de hidrógeno en la red en contraposición con el caso de la plasticidad convencional, donde en concordancia con los resultados obtenidos por Olden et al. [13] se muestra poca sensibilidad a la carga aplicada (ver Figura 8, Sección 5.2, apartado 3.2).

Las predicciones experimentales y numéricas para la apertura de la boca de la grieta (**CMOD**) muestran una reducción del enrocamiento de grieta cuando se tienen en cuenta las dislocaciones geoméricamente necesarias (**GNDs**), con poca sensibilidad a la variación de la longitud característica del material l_i . Las diferencias con la plasticidad clásica son más significativas al aumentar la carga. Los resultados revelan que al considerar los gradientes de deformación plástica en la modelización numérica se consigue un mejor ajuste de las predicciones numéricas con los experimentos de Olden et al. [13] (ver Figura 7, Sección 5.2, apartado 3.2).

Concentración de hidrógeno en la punta de grieta para el acero X80 usado en tuberías

El papel de los gradientes de deformación en la difusión del hidrógeno es evaluado comparando la distribución de hidrógeno en la vecindad de la punta de grieta para un acero X80 ampliamente utilizado en la fabricación de tuberías y susceptible del agrietamiento asistido por hidrógeno, con los resultados experimentales de Mao y Li [159].

La evaluación cuantitativa mediante ensayos experimentales de la concentración de hidrógeno en una distancia física del orden de micrómetros desde la punta de grieta no está exenta de dificultad. La técnica de espectrometría de masas de ión secundario, **SIMS**, parece ser una de las pocas técnicas capaces de medir con precisión los perfiles de concentración de hidrógeno a tales escalas. Mediante esta técnica, Mao y Li [159] midieron la distribución de hidrógeno en la vecindad de una grieta para una tubería de acero X80. En su trabajo experimental, cargaron probetas compactas CT en ausencia

de hidrógeno con tres niveles de carga $K_I = 84, 150, 173 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ($J = 32, 102, 136 \text{ kJ/m}^2$) y después realizaron su inmersión en una solución de NS-4 a potencial libre durante 72 h. Con el objetivo de clarificar de forma cuantitativa el papel de las dislocaciones geoméricamente necesarias (GNDs) en la difusión del hidrógeno hacia la punta de grieta, se reproduce numéricamente el ensayo experimental mediante una formulación de contorno como la descrita en la sección 3.1 de la publicación B. Los parámetros del material son: módulo de Young $E = 200 \text{ GPa}$, límite elástico $\sigma_Y = 600 \text{ MPa}$, coeficiente de Poisson $\nu = 0.3$. La ley de endurecimiento utilizada es descrita en [159] para un coeficiente de endurecimiento por deformación $n = 6.6$ y una constante adimensional del material $\alpha = 0.1$.

La distribución normalizada de la tensión hidrostática σ_H en el frente de grieta para la plasticidad convencional y la teoría de los gradientes de deformación plástica (con $l_i = 3 \mu\text{m}$), muestra diferencias relevantes en un dominio de varias decenas de micrómetros, donde se asientan varios mecanismos de daño. Es observable que para la plasticidad convencional, el valor máximo de la tensión hidrostática se mantiene constante al aumentar la carga aplicada, con un desplazamiento de su localización. Esta peculiaridad propia de la teoría de plasticidad convencional en grandes deformaciones no es observable cuando se tienen en cuenta las dislocaciones geoméricamente necesarias (GNDs), donde se observa que la tensión hidrostática σ_H es sensible al aumento de la carga aplicada y supera en más de 20 veces las predicciones de la plasticidad convencional.

Las medidas experimentales mediante la espectrometría de masas SIMS realizadas por Mao y Li [159] y las predicciones numéricas, respectivamente, del hidrógeno difusible y del hidrógeno en la red en la vecindad de la grieta después de 72 h, muestran que la tendencia de las medidas experimentales del hidrógeno difusible y las predicciones numéricas mediante los gradientes de deformación plástica se caracterizan por un crecimiento monotónico de la concentración de hidrógeno en un rango de pocos micrómetros hacia la punta de grieta $r \rightarrow 0$, incrementándose su valor con la carga aplicada, mientras que las predicciones numéricas de la plasticidad convencional solo reflejan la tendencia experimental lejos de la grieta (ver Figura 10, Sección 5.2, apartado 3.3).

3.3. *Publicación C*

Muchos fallos mecánicos se originan en defectos tipo entalla y en grietas que son producidas de forma accidental en servicio o durante el proceso de fabricación, lo que compromete seriamente la integridad estructural de los componentes, materiales y estructuras. Se ha decidido completar el trabajo investigador con el objetivo de acotar el dominio de influencia de las teorías de plasticidad no local también en entallas (ver sección 2, objetivo específico N° 3), dado que, a día de hoy, los esfuerzos investigadores están orientados a la evaluación del efecto de los gradientes de deformaciones únicamente en el caso de sólidos agrietados.

La sección 5.3 recoge la publicación titulada *Non-local plasticity effects on notch fracture mechanics*, donde, por medio de una formulación cohesiva, se evalúan las implicaciones de las teorías de plasticidad no local en el daño monotónico y cíclico en el fondo de la entalla. El trabajo investigador ha estado orientado a comprender los efectos de los gradientes de deformación en la fractura en modo I, investigando el papel de las dislocaciones geoméricamente necesarias en la elevación de los campos tensionales en las proximidades de la entalla. Así mismo, se han investigado las consecuencias en la propagación de grietas bajo cargas monotónicas y de fatiga, para un amplio rango de longitudes de escala y diferentes configuraciones de entallas. Dado el reciente interés en el uso de modelos de zona cohesiva para la determinación de un criterio de fractura para entallas (ver sección 1.1), se ha investigado también la influencia de los gradientes de deformación sobre la carga crítica de fractura.

A continuación, se realiza una discusión de los resultados obtenidos. En el presente estudio, se ha analizado, (i) campos estacionarios en la punta de la entalla, (ii) propagación de grieta bajo condiciones de carga monotónica, y (iii) crecimiento de grietas por fatiga.

Campos estacionarios en la punta de la entalla

Se ha evaluado la contribución de los gradientes de deformación plástica a la elevación de los campos tensionales en el fondo de la entalla. Los resultados se obtienen por medio de una formulación basada en una teoría de gradientes de deformación plástica basada en micromecanismos para grandes deformaciones. Los cálculos se han realizado para un acero con las siguientes

propiedades: $\sigma_Y/E = 0.003$, coeficiente de Poisson $\nu = 0.3$ y ley de endurecimiento isotrópico con un coeficiente de endurecimiento por deformación $n = 5$ dada por,

$$\sigma = \sigma_Y \left(1 + \frac{E \varepsilon_P}{\sigma_Y} \right)^{1/n} \quad (3.3)$$

La tensión de apertura σ_{22} ha sido computada para tres geometrías entalladas distintas (entalla en V aguda, entalla en V roma y entalla en U (ver Figura 3, Sección 5.3, apartado 3), considerando para cada caso diferentes radios y ángulos de entalla. La distribución normalizada de la tensión de apertura en el frente de la entalla muestra que en el caso de la entalla en V aguda, la elevación de los campos tensionales en el fondo de la entalla es significativa con respecto a la plasticidad convencional, debido a la contribución de las dislocaciones geoméricamente necesarias al endurecimiento del material, ausentes en la plasticidad convencional ($l/R_0 = 0$). Las diferencias se hacen aún más significativas cuando el parámetro de escala se incrementa, y particularmente con la reducción del ángulo de entrada de la entalla para una determinada carga externa aplicada. Para el ángulo más pequeño ($\alpha = 30^\circ$), los campos tensionales en el fondo de la entalla son 4 – 5 veces más elevados que para las predicciones de la plasticidad convencional (ver Figura 4, Sección 5.3, apartado 3.1). El dominio donde los gradientes de deformación son relevantes alcanza la decima parte del tamaño de la zona plástica ($r/R_0 = 0.1$); lejos de este dominio de influencia, las predicciones para la plasticidad convencional y para la teoría de los gradientes de deformación coinciden.

Para mayor claridad, se ha representado la distribución normalizada del gradiente de deformación plástica equivalente $\bar{\eta}^P$ en función de la distancia a la punta de la entalla r/R_0 para $\alpha = 30^\circ$ y $l/R_0 = 1$, junto con los contornos asociados a la densidad de dislocaciones geoméricamente necesarias ρ_{GND} en m^{-2} (ver Figura 5, Sección 5.3, apartado 3.1). Los resultados revelan un significativo y relevante incremento de los gradientes de deformación plástica en una fracción de la zona plástica. Como consecuencia, la densidad de dislocaciones geoméricamente necesarias, ausentes en plasticidad convencional, acomodan la deformación plástica no uniforme, contribuyendo a un endurecimiento del material y conduciendo a que las tensiones en el fondo de la entalla sean mucho más elevadas que las predicciones correspondientes a la plasticidad convencional.

La tensión de apertura es también calculada para el caso probeta con entallada en V roma, para diferentes radios de la entalla y $\alpha = 30^\circ$. Los resultados indican un incremento de los campos tensionales al disminuir el radio del fondo de la entalla, en concordancia con lo esperado. los campos tensionales en el fondo de la entalla son al menos 2 veces más elevados que para las predicciones de la plasticidad convencional, y pudiendo llegar este factor a 4 para los radios de entalla más pequeños (ver Figura 6, Sección 5.3, apartado 3.1).

Con unos resultados cualitativamente similares, los campos tensionales en el fondo de la entalla en U son 1.5 – 2.5 veces más elevados que para las predicciones de la plasticidad convencional. El dominio donde los gradientes de deformación son relevantes puede llegar a ser del orden de R_0 , y decrece significativamente cuando el radio de la entalla disminuye (ver Figura 7, Sección 5.3, apartado 3.1).

Comparando las tres geometrías consideradas se observa que la elevación de los campos tensionales es mayor para la probeta con entalla en V aguda, en concordancia con lo esperado a priori. La elevación tensional es más acusada para la entalla en V roma que para la entalla en U, ya que el radio de la entalla en V roma es típicamente más pequeño que el radio del defecto de la probeta entallada en U. En contra, las probetas en U muestran la mayor longitud física de escala en la que la influencia de los gradientes de deformaciones es prominente, seguida de las probetas con entalla en V roma. En definitiva, menores ángulos y radios conducen a que los gradientes de deformación plástica sean más prominentes. Consecuentemente, el tamaño del defecto caracteriza la influencia de las dislocaciones geoméricamente necesarias, que está limitada por dos casos: (a) una pequeña región dominio con tensiones mucho más elevadas que las predichas por los modelos basados en la plasticidad clásica, y (b) una mayor región de dominio con tensiones menos elevadas.

Carga monotónica

La iniciación y consecuente propagación de grietas bajo condiciones de carga monotónica ha sido investigada mediante una formulación cohesiva en modo I de sollicitación (ver Sección 5.3, apartado 2.2) donde las probetas han sido cargadas mediante el uso de un algoritmo de control (ver Sección 5.3, apartado 2.2.2). La relación entre la carga aplicada y el desplazamiento en el punto de aplicación de la carga se ha obtenido para una probeta con entalla en V aguda para $\alpha = 60^\circ$. Los resultados han

sido normalizados, representando la abscisa una medida de la deformación aplicada. Los cálculos se han llevado a cabo para un acero con las siguientes propiedades: $\sigma_Y/E = 0.003$, coeficiente de Poisson $\nu = 0.3$, coeficiente de endurecimiento isotrópico $N = 0.2$, y tensión cohesiva máxima $\sigma_{max,0} = 3.5 \sigma_Y$.

Los resultados indican que la carga se incrementa hasta un punto crítico, donde se observa una inestabilidad como consecuencia de la propagación de la grieta desde la punta de la entalla, donde el equilibrio de la solución y por ende la determinación de la carga crítica P_{max} , criterio de rotura en sólidos entallados, es obtenida gracias al algoritmo de control. La elevación tensional asociada con el endurecimiento del material debido a las dislocaciones geoméricamente necesarias reduce la carga crítica P_{max} , observándose más de un 30% de disminución para los valores más elevados del parámetro de escala l/R_0 . Por lo tanto, el efecto perjudicial de las dislocaciones geoméricamente necesarias compromete la integridad estructural tanto de grietas como defectos tipo entalla (ver Figura 8, Sección 5.3, apartado 3.2).

Los resultados de la tensión remota versus la longitud de fisura indican que el máximo de la tensión remota disminuye y que además es alcanzado a longitudes de fisura más pequeñas al aumentar el parámetro de escala l/R_0 , reduciendo la ductilidad y activando el proceso de fractura, al aumentar la contribución de los gradientes de deformaciones a la elevación de los campos tensionales en el fondo de la entalla (ver Figura 9, Sección 5.3, apartado 3.2).

La influencia de los gradientes de deformación plástica en la reducción de la carga crítica en las probetas con entalla en V aguda es cuantificada para tres ángulos diferentes, encontrándose que la carga crítica P_{max} disminuye al disminuir éste. Un fuerte efecto del gradiente es observado en todos los casos, debido a que incrementar el parámetro de escala l/R_0 conlleva un incremento en la densidad de dislocaciones geoméricamente necesarias, elevando los campos tensionales a nivel local y por ende disminuyendo la carga crítica P_{max} (ver Figura 10, Sección 5.3, apartado 3.2).

La carga crítica P_{max} es también determinada para entallas en V romas con un ángulo $\alpha = 30^\circ$ con diferentes radios, reduciéndose con la disminución del radio. Como en el caso anterior, el efecto de las dislocaciones geoméricamente necesarias persiste para todos los casos analizados. Sin

embargo, las diferencias con la plasticidad convencional parecen porcentualmente más elevadas para los radios más grandes (ver Figura 11, Sección 5.3, apartado 3.2). La variación de la carga crítica P_{max} con la tensión cohesiva máxima $\sigma_{max,0}$ ha sido determinada para cada parámetro de escala l/R_0 para evaluar la influencia de la elección del parámetro cohesivo $\sigma_{max,0}$ en la energía de fractura. Los resultados revelan que las diferencias entre la plasticidad convencional y la formulación basada en los gradientes de deformaciones son sensibles al valor del parámetro cohesivo $\sigma_{max,0}$. Este parámetro está limitado para la plasticidad convencional, por lo que en ese caso no se indican predicciones más allá de $\sigma_{max,0}/\sigma_Y = 2.5$. Al tener en cuenta el papel de las dislocaciones geoméricamente necesarias, pueden considerarse valores de la tensión de fractura más realistas, obteniéndose así diferencias cuantitativas significativamente más elevadas (ver Figura 12, Sección 5.3, apartado 3.2).

El caso de probetas con entalla en U con diferentes radios es también analizado, obteniéndose de nuevo que la carga crítica P_{max} se incrementa al aumentar el radio de la entalla. Las diferencias entre la plasticidad convencional y la formulación en base a los gradientes de deformaciones son importantes para todos los casos examinados. De nuevo, las diferencias con la plasticidad convencional parecen incrementarse de forma porcentual con el radio de la entalla (ver Figura 13, Sección 5.3, apartado 3.2).

Carga cíclica

La ley de endurecimiento por deformación es la misma que se considero bajo la consideración de campos estacionarios en la punta de la entalla, siendo por lo tanto isotrópica. Cabe considerar que, aunque bajo esta consideración no es posible capturar el efecto Bauschinger presente en muchos materiales metálicos para cargas bajas, lo que se pretende en esta investigación es obtener las diferencias entre la plasticidad convencional y las teorías basadas en los gradientes de deformación plástica. Teniendo en cuenta que los efectos de los gradientes de deformaciones se incrementan con la disipación plástica (ver Sección 5.3, apartado 3.1 y 3.2), cabe esperar que las diferencias en los resultados que se obtienen considerando endurecimiento isotrópico sean aún más relevantes si se considera el endurecimiento cinemático. Los modelos de los gradientes de deformación plástica basados en la teoría de las dislocaciones de Taylor han sido utilizados previamente con leyes de

endurecimiento isotrópicas para la modelización de la fatiga en componentes agrietados por Brinckmann y Siegmund [104,119].

En el caso de la entalla en V aguda, se ha obtenido el crecimiento de fisura en función del número de ciclos N para una amplitud de tensiones $\Delta\sigma = 0.06 \sigma_Y$, para tres ángulos y diferentes combinaciones de l/R_0 . Los resultados cuando se consideran los gradientes de deformación muestran que para todos los casos analizados: (i) la iniciación de la grieta sucede antes, y (ii) la velocidad de crecimientos de grieta por fatiga se incrementa (ver Figura 14, Sección 5.3, apartado 3.3).

La velocidad de crecimiento de grietas en fatiga es determinada para un amplio rango de amplitudes de tensiones. Para todos los casos se observa un incremento de la misma con el parámetro de escala l/R_0 y la carga externa aplicada. La influencia de las dislocaciones geométricamente necesarias parece incrementarse con la carga externa aplicada, sin embargo, las influencias no son demasiado significativas, en especial para el caso de la amplitud de tensiones más baja, dado que la presencia de flujo plástico en fatiga es menor que el caso monotónico. La velocidad de crecimiento de grietas por fatiga se incrementa al disminuir el ángulo de la entalla, tanto para la plasticidad convencional como para la teoría de los gradientes de deformaciones (ver Figura 15, Sección 5.3, apartado 3.3).

La propagación de grietas por fatiga es también investigada para la entalla en V con diferentes radios de entalla. Los resultados obtenidos para el crecimiento de fisura en función del número de ciclos revelan un incremento en la velocidad de crecimiento de grietas y una disminución en el número de ciclos de iniciación de fisura al aumentar el parámetro de escala l/R_0 . Se observa también que cuanto más pequeño es el radio de entalla, la velocidad de crecimiento de grietas es ligeramente más elevada (ver Figura 16, Sección 5.3, apartado 3.3).

En cuanto al efecto de la amplitud de tensiones sobre la velocidad de crecimiento de grietas por fatiga, el efecto de la misma sobre las entalla es el mismo que en el caso anterior, con poca sensibilidad de los resultados al radio de la entalla. Parece ser que el efecto de los gradientes de deformaciones es más sensible a la carga externa que a la geometría de la probeta, incrementándose las diferencias con

la plasticidad convencional al aumentar la magnitud de la amplitud de tensiones $\Delta\sigma$ (ver Figura 17, Sección 5.3, apartado 3.3).

Las mismas tendencias cualitativas son observadas para la probeta en U, donde el número de ciclos necesarios para iniciar el agrietamiento se reduce al aumentar el parámetro de escala l/R_0 y al disminuir el radio de la entalla, y donde los efectos de los gradientes de deformaciones se traducen en un aumento de la velocidad de crecimiento de grietas (ver Figura 18, Sección 5.3, apartado 3.3). Como en el caso de las probetas con entalla en V, la velocidad de crecimiento de grietas por fatiga muestra poca sensibilidad al efecto de las dislocaciones geoméricamente necesarias, en particular para amplitudes de tensiones bajas (ver Figura 19, Sección 5.3, apartado 3.3).

4. Conclusiones

4.1. Logros

Dado que el fallo por fatiga debida a esfuerzos mecánicos repetitivos en un ambiente de hidrógeno es un problema que se repite con frecuencia en muchos componentes industriales y aplicaciones ingenieriles, y que la mayoría de los modelos de zona cohesiva predicen la fragilización inducida por el ambiente bajo cargas monotónicas, con escasas aportaciones en el caso de cargas cíclicas (Publicación A, [160] y [15]), se ha desarrollado un marco numérico para examinar la fractura y el daño por hidrógeno a partir de formulaciones cohesivas sensibles a la concentración de hidrógeno, aplicable tanto para cargas cíclicas como monotónicas, en el marco de la plasticidad convencional mediante la teoría de las deformaciones finitas. El marco numérico es también utilizado para examinar la influencia del efecto plástico de escala en probetas entalladas en ausencia de hidrógeno mediante una formulación SGP basada en mecanismos. Se ha modelizado la difusión del hidrógeno hacia la zona del proceso de fractura incorporando la influencia de los gradientes de deformación plástica con un enfoque fenomenológico. Los modelos numéricos desarrollados se han implementado, validado y empleado para analizar varios casos de interés desde el punto de vista de la integridad estructural.

El marco numérico ha sido evaluado mediante la modelización de probetas agrietadas y entalladas sometidas a cargas monotónicas y de fatiga de notable relevancia en la práctica ingenieril. Así mismo, se ha investigado el transporte del hidrógeno hacia la vecindad de la grieta tanto para la teoría de plasticidad clásica como para las teorías de plasticidad no local, destacando los siguientes logros:

- El modelo de zona cohesiva hidrogeno- y cíclico-dependiente, desarrollado en el marco de la teoría de plasticidad J2 en deformaciones finitas, es capaz de predecir el relevante incremento en la velocidad de crecimiento de grietas en fatiga en presencia de hidrógeno cuando la frecuencia de aplicación de la carga disminuye en concordancia con los resultados experimentales.
- Se ha llevado a cabo un completo estudio de la capacidad del modelo de zona cohesiva para capturar la velocidad de crecimiento de grietas por fatiga en presencia de hidrógeno

en función de la agresividad del ambiente, las propiedades del material, la constricción y la carga aplicada, identificando la necesidad de incorporar los gradientes de deformación plástica en la modelización para ganar fidelidad en los resultados.

- Se ha modelizado, por primera vez, la difusión del hidrógeno hacia la zona del proceso de fractura considerando la influencia de los gradientes de deformación plástica. Los campos tensionales y la concentración de hidrógeno en el frente de la grieta se han caracterizado en el marco de la teoría de las deformaciones finitas, investigando en profundidad las relevantes implicaciones de las dislocaciones geoméricamente necesarias en los mecanismos de fragilización por hidrógeno.
- Se ha llevado a cabo, por primera vez, un estudio de la influencia de las dislocaciones geoméricamente necesarias en la modelización del comportamiento a fractura y fatiga en defectos tipo entalla. En el primer caso, se ha determinado la carga crítica de rotura, así como la influencia de la tensión remota aplicada sobre la longitud de fisura bajo carga monotónica. En el segundo caso, se ha evaluado la influencia sobre la velocidad de crecimiento de grietas bajo cargas cíclicas en probetas entalladas con diferentes geometrías.

4.2. Conclusiones

El trabajo investigador ha sido orientado en primer lugar a estudiar la capacidad predictiva del modelo de zona cohesiva en el marco de la teoría de plasticidad J2 en deformaciones finitas para modelizar la fatiga asistida por el ambiente. Posteriormente se ha investigado la influencia del efecto de escala en el agrietamiento asistido por hidrógeno por medio de una formulación fenomenológica de la teoría de los gradientes de deformación plástica en el marco de las deformaciones finitas y la implementación numérica de ley de Fick (incorporando el efecto de la tensión hidrostática). Finalmente, se ha investigado la influencia de los gradientes de deformación plástica en el fallo de componentes con entallas mediante la teoría convencional basada en mecanismos y una formulación de zona cohesiva adecuada para carga monotónica y cíclica. Particularmente,

- Los análisis numéricos de propagación de grietas por fatiga revelan un importante incremento en la velocidad de crecimiento de grietas con el aumento del contenido de hidrógeno en el ambiente como consecuencia de la disminución de la energía de fractura, así como con la disminución de la frecuencia de aplicación de la carga, capturando cualitativamente la degradación y fallo de una amplia gama de aleaciones metálicas en ambientes agresivos debida a cargas cíclicas.
- La baja susceptibilidad de la velocidad de crecimiento de grieta a la frecuencia de aplicación de la carga en ensayos lentos conlleva la necesidad de incorporar fuentes adicionales de tensiones. Dado que, la modificación del límite elástico, el coeficiente de endurecimiento y las condiciones de constricción no es suficiente, se sugiere la necesidad de incorporar otros efectos, como el endurecimiento a nivel local debido a los gradientes de deformación plástica.
- El análisis numérico basado en la teoría de los gradientes de deformación plástica indica que las dislocaciones geoméricamente necesarias promueven un endurecimiento del material a nivel local y conducen a que los campos tensionales se eleven significativamente con respecto a las predicciones de la plasticidad convencional en una distancia de varios micrómetros más allá de la punta de la fisura.
- La contribución de los gradientes de deformación plástica al endurecimiento del material disminuye el enroscamiento de la punta de grieta, al no existir la reducción de tensión a nivel local inherente a las predicciones de la plasticidad convencional, observándose óptima concordancia entre los resultados numéricos y experimentales.
- Las predicciones numéricas muestran niveles muy elevados de concentración de hidrógeno en la red en la vecindad de la grieta en concordancia con los experimentos. La concentración de hidrógeno en la red aumenta con la carga externa aplicada y crece monotónicamente hacia la punta de grieta, suprimiéndose así el máximo de concentración intrínseco a las predicciones de la plasticidad convencional.

- La incorporación de las teorías de los gradientes de deformación plástica en la evaluación de la integridad estructural de componentes entallados muestra que las dislocaciones geoméricamente necesarias son responsables de una sustancial reducción en la ductilidad y la máxima capacidad de carga bajo condiciones de carga monotónica.
- El tamaño del defecto tipo entalla caracteriza la influencia de las dislocaciones geoméricamente necesarias, con una pequeña región dominio con tensiones mucho más elevadas que las predichas por los modelos basados en la plasticidad convencional en el caso de probetas con entalla en V aguda y en V roma, y una mayor región dominio con tensiones menos elevadas en el caso de probetas con entallas en U.
- En el caso de propagación de grietas en probetas entalladas bajo cargas de fatiga, existe un perceptible incremento en la velocidad de propagación de grietas y una prematura iniciación de las mismas.

Los resultados de la presente tesis doctoral ponen de manifiesto la necesidad ineludible de abarcar las teorías de los gradientes de deformación plástica en la modelización de la fragilización por hidrógeno, y la idoneidad de los modelos de zona cohesiva para la predicción de la fatiga asistida por el ambiente. Los resultados son sin duda alentadores, teniendo en cuenta que el marco numérico propuesto podría servir de base para el desarrollo de una nueva generación de modelos numéricos predictivos, donde predecir con fiabilidad el fenómeno de la fragilización por hidrógeno es de vital importancia en los componentes industriales, y en particular en el sector energético, contribuyendo así a la superación de las limitaciones actuales para el empleo de los aceros de alta resistencia en las infraestructuras para el transporte y el almacenaje del hidrógeno de forma segura y económica.

4.3. Trabajo futuro

Los resultados ponen de manifiesto la necesidad de adoptar las teorías de los gradientes de deformación plástica en la modelización del agrietamiento asistido por hidrógeno, con especial transcendencia en la modelización de la fatiga asistida por hidrógeno, con el objetivo de obtener

predicciones numéricas que reproduzcan con fidelidad los resultados experimentales. En consecuencia, el trabajo futuro se perfila enfocado principalmente al desarrollo de un marco numérico generalizado que incorpore (i) un modelo cohesivo sensible a la concentración de hidrógeno y al daño cíclico, (ii) una descripción del comportamiento mecánico caracterizada por teorías de gradientes de deformación plástica y (iii) una caracterización del hidrógeno atrapado en las dislocaciones asociadas a la deformación plástica y a los gradientes de dichas deformaciones. Este marco numérico debe ser empleado tanto para predecir el inicio y la propagación del daño en componentes agrietados y entallados. Poniendo especial énfasis en los siguientes aspectos:

- Profundizar en el papel del hidrógeno atrapado en las trampas reversibles y su correlación con las dislocaciones geoméricamente necesarias, dada la elevada densidad de dislocaciones en la vecindad de la grieta debida a los gradientes de deformación plástica es particularmente interesante, así como la modelización de otro tipo de trampas microestructurales.
- Aunque la fractura asistida por hidrógeno a nivel macroscópico parece ser frágil, merece especial interés investigar los efectos microestructurales en la modelización numérica con el objetivo de considerar los mecanismos de daño característicos de la fractura dúctil. Por lo tanto desarrollar un modelo numérico con una formulación cohesiva considerando a nivel microscópico el crecimiento y la coalescencia de microhuecos en el marco del mecanismo de plastificación local producida por el hidrógeno en el avance del frente de grieta, que considere el efecto de escala en el crecimiento de microhuecos podría ser un tema particularmente atractivo para futuros trabajos. La modelización conjunta de los mecanismos de la fractura dúctil y de la fractura frágil es de especial interés en la influencia de la concentración de hidrógeno en la transición dúctil-frágil.
- Investigar sobre los procesos de adsorción del hidrógeno analizando la idoneidad del modelo teórico utilizado dentro del marco numérico desarrollado y su correlación con los resultados experimentales, parece particularmente interesante.

4. Conclusions

4.1. Achievements

Despite the fact that structural integrity problems in corrosive environments often arise due to cyclic loading, modelling efforts have been mainly restricted to monotonic loading conditions, with few contributions in the case of cyclic loading (Paper A, [160] y [15]), a numerical framework to assess fracture and hydrogen embrittlement by means of a hydrogen-sensitive cohesive formulation under both monotonic and cyclic loading conditions has been developed in finite strain J2 plasticity. This numerical scheme is also enhanced to evaluate non-local plasticity effects on notched specimens by means of a mechanism-based strain gradient plasticity theory in the absence of hydrogen. In addition, hydrogen diffusion towards the fracture process zone has been widely examined by means of a phenomenological strain gradient plasticity formulation. The numerical models have been successfully implemented, validated and used to address several cases of particular interest from the structural integrity perspective.

The numerical framework has been proven by the modelling of cracked and notched specimens under both monotonic and cyclic loading, of particular interest to engineering practice. Furthermore, hydrogen diffusion to the crack tip has been thoroughly investigated both for conventional plasticity and non-local plasticity theories. The following achievements must be highlighted:

- A novel hydrogen- and cycle-dependent cohesive zone model has been presented, suitable for large deformations. The model is able to predict a relevant increase in crack growth rates with hydrogen content in the surrounding environment and decreasing load frequency, in agreement with experimental observations.
- The capacity of the model to capture the sensitivity of fatigue crack growth rates in a hydrogenous environment is investigated taking into account material properties, constraint conditions and applied loads, revealing the need to incorporate additional sources of stress elevation, such as gradient-enhanced dislocation hardening, to attain agreement with the experiments.

- Hydrogen diffusion towards fracture process zone accounting for the influence of plastic strain gradients has been for the first time investigated. Stress and hydrogen concentration distributions ahead the crack tip have been characterized within the finite deformation theory. The influence of the geometrically necessary dislocations in hydrogen embrittlement mechanisms has been thoroughly investigated.
- The impact of geometrically necessary dislocations in notch-induced failure is for the first time investigated by strain gradient plasticity computations of stationary notch tip fields, critical load and cohesive crack propagation under monotonic loading, and fatigue crack growth.

4.2. Concluding remarks

In this work we predict environmentally assisted fatigue by means of a cohesive zone model and a finite strain J2 plasticity characterization of the bulk response. Plastic size effects in hydrogen transport are subsequently investigated by means of a phenomenological strain gradient plasticity theory and a numerical implementation of Fick's law (incorporating the effect of the hydrostatic stress). Lastly, the influence of plastic strain gradients in notched assisted failure has been investigated. Numerous notch configurations and geometries are investigated by means of a mechanism-based model and a cohesive zone formulation suitable for monotonic and cyclic loading. Particularly,

- The model qualitatively captures the deleterious effect of hydrogen on crack growth resistance under cyclic loading conditions. In agreement with experimental observations, crack propagation rates increase with the hydrogen content and decreasing loading frequencies.
- The crack growth sensitivity to changes in the loading frequency seems to be considerably smaller than that reported in the experiments. Changing material hardening, constraint conditions and yield strength is not sufficient, suggesting the need to incorporate other effects, such as strain gradient hardening.

- Numerical analysis by means of strain gradient plasticity shows that geometrically necessary dislocations arise in the vicinity of the crack, promoting local strain hardening and leading to much higher stress levels than those predicted by conventional plasticity within several micrometres within the crack tip.
- Crack tip blunting is severely reduced due to the contributions of strain gradients to the work hardening of the material, avoiding the local stress reduction inherent to conventional plasticity predictions. Strain gradient plasticity predictions seem to provide a better fit with the experiments.
- Gradient enriched predictions show very high levels of lattice hydrogen concentration ahead of the crack tip in agreement with experimental observations. The concentration of lattice hydrogen increases monotonically towards the crack tip and with the remote load, avoiding the local hydrogen concentration peak observed if geometrically necessary dislocations are neglected.
- The influence of plastic strain gradients on notched assisted failure reveals that geometrically necessary dislocations entail a significant reduction on the ductility and the maximum carrying capacity under monotonic crack propagation.
- Smaller notches show a significant gradient-enhanced stress elevation over a gradient-dominated zone in the microscale; as opposed to larger notches, which lead to a larger gradient dominated region with a lesser stress elevation.
- Fatigue crack propagation at notches shows that plastic strain gradients effects lead to a noticeable enhancement of crack growth rates and a premature initiation of cracking.

The results of the present doctoral thesis reveal the need to embrace strain gradient plasticity theories in modelling of hydrogen embrittlement, and the suitability of a predictive cohesive modeling framework for corrosion fatigue. Important insight is gained and the numerical framework proposed could serve as basis for the development of the new generation of models for hydrogen

embrittlement. Reliable modelling of hydrogen assisted cracking is of utmost importance in industrial applications and in the energy sector, enabling the use of high strength steels to develop reliable transport and storage infrastructure for future energy systems.

4.3. Future work

Results reveal the need to consider the role of geometrically necessary dislocations to sufficiently enhance hydrogen uptake to the fracture process zone. Consequently, future work should be oriented to the development of a coupled mechanical-diffusion framework incorporating a strain gradient description of the mechanical response. This numerical framework should not only be used to model hydrogen assisted failure ahead of cracks, but also in notched components.

In consistency with high dislocation density due to plastic strain gradients in the vicinity of the crack, the role played by reversibly trapped hydrogen at geometrically necessary dislocations is particularly interesting, as well as incorporating hydrogen interaction with multiple traps.

Although hydrogen assisted cracking macroscopically appears to be brittle, microstructural damage deserves special attention. Particularly interesting for future research is the development of a cohesive finite element formulation for modelling ductile fracture capturing size effect in void growth by hydrogen enhanced localized plasticity. Numerical modelization for both ductile and brittle fracture is particularly interesting in ductile-to-brittle transition hydrogen concentration.

Understanding hydrogen adsorption processes through theoretical hydrogen adsorption models and their correlation with experiments is particularly appealing.

- [1] W. H. Johnson, ‘On some remarkable changes produced in iron and steel by the action of hydrogen and acids’, *Proc. R. Soc. London*, vol. 23, pp. 168–179, 1874.
- [2] R. L. S. Thomas, J. R. Scully, and R. P. Gangloff, ‘Internal hydrogen embrittlement of ultrahigh-strength AERMET100 steel’, *Metall. Mater. Trans.*, vol. 34, pp. 327–44, 2003.
- [3] D. Li, R. P. Gangloff, and J. R. Scully, ‘Hydrogen trap states in ultrahigh-strength AerMet 100 steel.’, *Metall. Mater. Trans.*, vol. 35, pp. 849–964, 2004.
- [4] D. Figueroa and M. J. Robinson, ‘The effects of sacrificial coatings on hydrogen embrittlement and re-embrittlement of ultra high strength steels’, *Corros. Sci.*, vol. 50, pp. 1066–1079, 2008.
- [5] R. Ayer and P. Machmeier, ‘Transmission electron microscopy examination of hardening and toughening phenomena in AerMet100’, *Metall. Mater. Trans.*, vol. 24, pp. 1943–1955, 1993.
- [6] E. Martínez-Pañeda, C. F. Niordson, and R. P. Gangloff, ‘Strain gradient plasticity-based modeling of hydrogen environment assisted cracking’, *Acta materialia*, vol. 117, pp. 321–332, 2016.
- [7] P. Sofronis and R. M. McMeeking, ‘Numerical analysis of hydrogen transport near a blunting crack tip’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 37, pp. 317–350, 1989.
- [8] A. H. Krom, R. W. J. Koers, and A. Bakker, ‘Hydrogen transport near a blunting crack tip’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 47, pp. 971–992, 1999.
- [9] R. P. Novak, R. Yuan, B. P. Somerday, P. Sofronis, and R. O. Ritchie, ‘A statistical, physical-based, micro-mechanical model of hydrogen-induced intergranular fracture in steel’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 58, pp. 206–226, 2010.
- [10] S. Serebrinsky, E. A. Carter, and M. Ortiz, ‘A quantum-mechanically informed continuum model of hydrogen embrittlement’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 52, pp. 2403–2430, 2004.
- [11] Y. Liang and P. Sofronis, ‘Toward a phenomenological description of hydrogen-induced decohesion at particle/matrix interfaces’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 51, pp. 1509–1531, 2003.
- [12] A. Alvaro, V. Olden, and O. M. Akselsen, ‘3D cohesive modelling of hydrogen embrittlement in the heat affected zone of an X70 pipeline steel – Part II’, *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 39, pp. 3528–3541, 2014.
- [13] V. Olden, C. Thaulow, R. Johnsen, E. Østby, and T. Berstad, ‘Influence of hydrogen from cathodic protection on the fracture susceptibility of 25% Cr duplex stainless steel—Constant load SENT testing and FE-modelling using hydrogen influenced cohesive zone elements’, *Eng. Fract. Mech.*, vol. 76, pp. 827–844, 2009.
- [14] I. Scheider, M. Pfuff, and W. Dietzel, ‘Simulation of hydrogen assisted stress corrosion cracking using the cohesive model’, *Engineering Fract. Mech.*, vol. 75, pp. 4283–4291, 2008.
- [15] G. Bilotta, C. Moriconi, G. Hénaff, M. Arzaghi, and D. Halm, ‘A cohesive zone model to simulate fatigue crack propagation under high pressure gaseous hydrogen’, *Adv. Mater. Res.*, vol. 891, pp. 765–770, 2014.

-
- [16] J. Sanchez, S. F. Lee, M. A. Martin-Rengel, J. Fulla, C. Andrade, and J. Ruiz-Hervías, ‘Measurement of hydrogen and embrittlement of high strength steels’, *Eng. Fail. Anal.*, vol. 59, pp. 467–477, 2006.
- [17] R. P. Gangloff and B. P. Somerday, Eds., ‘Characterisation and analysis of hydrogen embrittlement’, in *Gaseous hydrogen embrittlement of materials in energy technologies: The problem, its characterisation and effects on particular alloy classes*, Cambridge: Woodhead Publishing, 2012, pp. 329–338.
- [18] R. P. Gangloff and B. P. Somerday, Eds., ‘Modelling hydrogen embrittlement’, in *Gaseous hydrogen embrittlement of materials in energy technologies: Mechanisms, modelling and future developments*, Cambridge: Woodhead Publishing, 2012, pp. 207–242.
- [19] C. A. Zappfe and C. E. Sims, ‘Hydrogen embrittlement, internal stress and defects in steel’, *Trans. Metall. Soc. AIME*, vol. 145, p. 225–271., 1941.
- [20] A. R. Troiano, ‘The role of hydrogen and other interstitials in the mechanical behaviour of metals’, *Trans. ASM*, vol. 52, pp. 54–80, 1960.
- [21] G. G. Hancock and H. H. Johnson, ‘Hydrogen, oxygen, and subcritical crack growth in a high-strength steel’, *Trans. Metall. Soc. AIME*, vol. 236, no. 4, pp. 513–516, 1966.
- [22] C. St. John and W. W. Gerberich, ‘Effect of loading mode on hydrogen embrittlement’, *Metall. Trans.*, vol. 4, pp. 589–594, 1973.
- [23] D. P. Williams and H. G. Nelson, ‘Embrittlement of 4130 steel by low-pressure gaseous hydrogen’, *Metall. Mater. Trans.*, vol. 1, pp. 63–68, 1970.
- [24] H. P. Van Leeuwen, ‘A Quantitative Model of Hydrogen Induced Grain Boundary Cracking’, *Corrosion*, vol. 29, pp. 197–204, 1973.
- [25] W. W. Gerberich and A. G. Wright, ‘Recent studies of grain size and hydrogen concentration on hydrogen embrittlement in bcc metals’, in *2nd Intern. Conf. on Material Degradation*, pp. 183–205.
- [26] P. Marsh, W. Zielinski, H. Huang, and w. w. Gerberich, ‘Crack-tip dislocation emission arrangements for equilibrium-III. Application to large applied stress intensities’, *Acta Metall. Mater.*, vol. 40, no. 11, pp. 2883–2894, 1992.
- [27] M. S. Daw, S. Murray, and M. I. Baskes, ‘Application of the embedded atom method to hydrogen embrittlement’, *Chem. Phys. Fract.*, pp. 196–218, 1987.
- [28] J. E. Angelo, W. W. Gerberich, N. R. Moody, and S. M. Foiles, ‘Effects of Hydrogen on the Fracture Properties of 9 and 11 Tilt Boundaries in Nickel.’, in *MATERIALS RESEARCH SOCIETY SYMPOSIUM PROCEEDINGS*, vol. 278, 1992, p. 159.
- [29] U. Komaragiri, S. R. Agnew, R. P. Gangloff, and M. Begley, ‘The role of macroscopic hardening and individual length-scales on crack tip stress elevation from phenomenological strain gradient plasticity’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 56, pp. 3527–3540, 2008.
- [30] Y. Lee and R. P. Gangloff, ‘Measurement and Modeling of Hydrogen Environment–Assisted Cracking of Ultra-High-Strength Steel’, *Metall. Mater. Trans.*, vol. 38, pp. 2174–2190, 2007.
- [31] C. D. Beachem, ‘A new model for hydrogen-assisted cracking (hydrogen embrittlement)’, *Metall. Trans.*, vol. 3, pp. 437–451, 1972.

- [32] I. M. Robertson and H. K. Birnbaum, 'An HVEM study of hydrogen effects on the deformation and fracture of nickel', *Acta Metall.*, vol. 34, pp. 353–366, 1986.
- [33] A. S. Tetelman, 'Fundamental Aspects of Stress Corrosion Cracking', *Fundam. Asp. Stress Corros. Crack.*, vol. 446, 1969.
- [34] G. Lu, D. Orlikowski, I. Park, O. Politano, and E. Kaxiras, 'Energetics of hydrogen impurities in aluminum and their effect on mechanical properties', *Phys. Rev.*, vol. 65, p. 64102, 2002.
- [35] Y. Liang, P. Sofronis, and R. J. Dodds, 'Interaction of hydrogen with crack-tip plasticity: effects of constraint on void growth', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 366, pp. 397–411, 2004.
- [36] R. P. Gangloff, 'Hydrogen assisted cracking of high strength alloys', in *Comprehensive Structural Integrity*, vol. 6, I. Milne, R. O. Ritchie, and B. Karahaloo, Eds. New York: Elsevier Science, 2003, pp. 1–194.
- [37] H. K. Birnbaum and P. Sofronis, 'Hydrogen-enhanced localized plasticity—a mechanism for hydrogen-related fracture', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 176, pp. 191–202, 1994.
- [38] A. Taha and P. Sofronis, 'A micromechanics approach to the study of hydrogen transport and embrittlement', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 68, pp. 803–837, 2001.
- [39] A. McNabb and P. K. Foster, 'A new analysis of the diffusion of hydrogen in iron and ferritic steels', *Trans. Metall. Soc. AIME*, vol. 227, pp. 618–627, 1963.
- [40] R. A. Oriani, 'The diffusion and trapping of hydrogen in steel', *Acta Metall.*, vol. 18, pp. 147–157, 1970.
- [41] G. R. Caskey and W. L. Pillinger, 'Effect of trapping on hydrogen permeation', *Metall. Mater. Trans.*, vol. 6, pp. 467–476, 1975.
- [42] A. Turnbull and R. B. Hutchings, 'Modelling of thermal desorption of hydrogen from metals', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 238, pp. 317–328, 1997.
- [43] G. M. Pressouyre and I. M. Bernstein, 'An example of the effect of hydrogen trapping on hydrogen embrittlement', *Metall. Trans. A*, vol. 12, no. 5, pp. 835–844, 1981.
- [44] E. Barel, G. B. Hamu, D. Eliezer, and L. Wagner, 'The effect of heat treatment and HCF performance on hydrogen trapping mechanism in Timetal LCB alloy', *J. Alloys Compd.*, vol. 468, pp. 77–86, 2009.
- [45] P. M. Novak, 'A dislocation-based constitutive model for hydrogen-deformation interactions and a study of hydrogen-induced intergranular fracture', PhD Thesis, University of Illinois at Urbana-Champaign, 2009.
- [46] A. J. Kurnick and H. H. Johnson, 'Deep trapping states for hydrogen in deformed iron', *Acta Metall.*, vol. 28, pp. 33–39, 1980.
- [47] P. Sofronis, Y. Liang, and N. Aravas, 'Hydrogen induced shear localization of the plastic flow in metals and alloys', *Eur. J. Mech.*, vol. 20, pp. 857–872, 2001.
- [48] G. J. Thomas, 'Hydrogen trapping in FCC metals', in *Hydrogen Effects in Metals, Proceedings of the Third International Conference on Effect of Hydrogen on Behavior of Materials (Moran, WY, 1980)*, I. M. Bernstein and A. W. Thompson, Eds. New York: Transactions of the Metallurgical Society AIME, 1981, pp. 77–85.

-
- [49] J. Lufrano, P. Sofronis, and D. Symons, 'Hydrogen transport and large strain elastoplasticity near a notch in alloy X-750', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 59, pp. 827–845, 1998.
- [50] J. C. M. Li, R. A. Oriani, and L. S. Darken, 'The thermodynamic of stressed solids', *Z für Phys Chem Neue Folge*, vol. 49, pp. 271–290, 1966.
- [51] Sun and Shuming, 'Investigation of deformation field and hydrogen partition around crack tip in fcc single crystal', *Metall. Mater. Trans.*, vol. 26, pp. 731–739, 1995.
- [52] T. Zhang, W. Y. Chu, K. W. Gao, and L. J. Qiao, 'Study of correlation between hydrogen-induced stress and hydrogen embrittlement.', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 347, pp. 291–299, 2003.
- [53] A. Turnbull, D. H. Ferriss, and H. Anzai, 'Modelling of hydrogen distribution at a crack tip', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 206, pp. 1–13, 1996.
- [54] C. V Di Leo and L. Anand, 'Hydrogen in metals: A coupled theory for species diffusion and large elastic–plastic deformations', *Int. J. Plast.*, vol. 43, pp. 42–69, 2013.
- [55] N. A. Fleck, G. M. Muller, M. F. Ashby, and J. W. Hutchinson, 'Strain gradient plasticity: theory and experiment', *Acta Metall. Mater.*, vol. 42, pp. 475–487, 1994.
- [56] W. D. Nix, H. Gao, 'Indentation size effects in crystalline materials: a law for strain gradient plasticity', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 46, pp. 411–425, 1998.
- [57] J. S. Stölken and A. G. Evans, 'A microbend test method for measuring the plasticity length scale', *Acta materialia*, vol. 46, pp. 5109–5115, 1998.
- [58] E. Martínez-Pañeda, 'Strain gradient plasticity-based modeling of damage and fracture', PhD Thesis, University of Oviedo, 2016.
- [59] M. Dadfarnia, P. Sofronis, and T. Neeraj, 'Hydrogen interaction with multiple traps: can it be used to mitigate embrittlement?', *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 36, pp. 10141–10148, 2011.
- [60] M. Dadfarnia, M. L. Martin, A. Nagao, P. Sofronis, and I. M. Robertson, 'Modeling hydrogen transport by dislocations', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 78, pp. 511–525, 2015.
- [61] L. Jemblie, V. Olden, and O. M. Akselsen, 'A coupled diffusion and cohesive zone modelling approach for numerically assessing hydrogen embrittlement of steel structures', *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 42, pp. 1980–1995, 2017.
- [62] D. S. Dugdale, 'Yielding in Steel Sheets Containing Slits', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 8, pp. 100–104, 1960.
- [63] G. I. Barenblatt, 'The Mathematical Theory of Equilibrium Cracks in Brittle Fracture', *Adv. Appl. Mech.*, vol. 7, pp. 55–129, 1962.
- [64] S. Roth, G. Hütter, and M. Kuna, 'Simulation of fatigue crack growth with a cyclic cohesive zone model', *Int. J. Fract.*, vol. 188, pp. 23–45, 2014.
- [65] M. Elices, G. V Guinea, J. Gómez, and J. Planas, 'The cohesive zone model: advantages, limitations and challenges', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 69, pp. 137–163, 2002.
- [66] A. Cornec, I. Scheider, and K. H. Schwalbe, 'On the practical application of the cohesive model', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 70, pp. 1963–1987, 2003.

- [67] A. Hillerborg, M. Modeer, and P. E. Petersson, ‘Analysis of Crack Formation and Crack Growth in Concrete by Means of Fracture Mechanics and Finite Elements’, *Cem. Concr. Res.*, vol. 6, pp. 773–782, 1976.
- [68] W. Brocks, A. Cornec, and I. Scheider, ‘Computational aspects of nonlinear fracture mechanics’, *Gks Forschungszentrum Geesthacht Gmbh-Publications-Gks*, vol. 30, pp. 2–187, 2003.
- [69] I. Scheider and W. Brocks, ‘The effect of the traction separation law on the results of cohesive zone propagation analyses’, *Key Eng. Mater.*, vol. 251–252, pp. 313–318, 2003.
- [70] V. Tvergaard and J. W. Hutchinson, ‘The relation between crack growth resistance and fracture process parameters in elastic-plastic solids’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 40, pp. 1377–1397, 1992.
- [71] X. P. Xu and A. Needleman, ‘Void nucleation by inclusion debonding in a crystal matrix’, *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, vol. 1, pp. 111–132, 1993.
- [72] X. P. Xu and A. Needleman, ‘Numerical simulations of fast growth in brittle solids’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 42, pp. 1397–1434, 1994.
- [73] Z. P. Bazant, ‘Concrete fracture models: testing and practice’, *Eng. Fract. Mech.*, vol. 69, pp. 165–205, 2002.
- [74] T. Siegmund and W. Brocks, ‘Modeling of crack growth in thin sheet aluminium alloys’, *ASTM Spec. Tech. Publ.*, no. 1389, pp. 475–485, 2000.
- [75] M. Ortiz and A. Pandolfi, ‘Finite-deformation irreversible cohesive elements for three-dimensional crack-propagation analysis’, *Int. J. Numer. Methods Eng.*, vol. 44, pp. 1267–1282, 1999.
- [76] A. Needleman, ‘A continuum model for void nucleation by inclusion debonding’, *J. Appl. Mech.*, vol. 54, pp. 525–531, 1987.
- [77] J. Planas, G. V. Guinea, and M. Elices, ‘Size effect and inverse analysis in concrete fracture’, *Int. J. Fract.*, vol. 95, pp. 367–378, 1999.
- [78] A. Needleman, ‘An analysis of tensile decohesion along an interface’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 38, pp. 289–324, 1990.
- [79] V. Tvergaard and J. W. Hutchinson, ‘Effect of T-stress on mode I crack growth resistance in a ductile solid’, *Int. J. Solids Struct.*, vol. 31, pp. 823–833, 1994.
- [80] V. Tvergaard and J. W. Hutchinson, ‘Toughness of an interface along a thin ductile layer joining elastic solids’, *Philos. Mag. A*, vol. 70, no. 4, pp. 641–656, 1994.
- [81] V. Tvergaard, ‘Resistance curves for mixed mode interface crack growth between dissimilar elastic-plastic solids’, *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 49, pp. 2689–2703, 2001.
- [82] G. Lin, A. Cornec, and K. H. Schwalbe, ‘Three-dimensional finite element simulation of crack extension in aluminium alloy 2024-FC’, *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, vol. 21, pp. 1159–1173, 1998.
- [83] P. D. Zavattieri and H. D. Espinosa, ‘Grain level analysis of crack initiation and propagation in brittle solids’, *Acta Materialia*, vol. 49, pp. 195–208, 2001.
- [84] A. L. Rosa et al., ‘A loading rate dependent cohesive model for concrete fracture’, *Eng. Fract. Mech.*, vol. 82, pp. 4291–4311, 2012.

-
- [85] D. H. Allen and C. R. Searcy, 'A micromechanical model for a viscoelastic cohesive zone', *Int. J. Fract.*, vol. 107, pp. 159–176, 2001.
- [86] M. G. A. Tijssens, E. Van der Giessen, and L. J. Sluys, 'Modeling of crazing using a cohesive surface methodology', *Mech. Mater.*, vol. 32, pp. 19–35, 2000.
- [87] K. H. Schwalbe, I. Scheider, and A. Cornec, *Guidelines for applying cohesive models to the damage behaviour of engineering materials and structures*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2013.
- [88] K. Park and G. H. Paulino, 'Cohesive Zone Models: A Critical Review of Traction-Separation Relationships Across Fracture Surfaces', *Appl. Mech. Rev.*, vol. 2011, no. 6, p. 60802, 64AD.
- [89] J. L. Bouvard, J. L. Chabobe, F. Feyel, and F. Gallerneau, 'A cohesive zone model for fatigue and creep-fatigue crack growth in single crystal superalloys', *Int. J. Fatigue*, vol. 31, pp. 868–879, 2009.
- [90] G. T. Camacho and M. Ortiz, 'Computational modelling of impact damage in brittle materials', *Int. J. Solids Struct.*, vol. 33, pp. 2899–2938, 1996.
- [91] V. K. Goyal, E. R. Johnson, and C. G. Davila, 'Irreversible constitutive law for modeling the delamination process using interfacial surface discontinuities', *Compos. Struct.*, vol. 65, pp. 289–305, 2004.
- [92] L. J. Lucas, T. M. Black, and D. P. Jones, 'Use of cohesive elements in fatigue analysis', *ASME Press. Vessel. Pip. Div. Conf.*, pp. 13–25, 2007.
- [93] O. Nguyen, E. A. Repetto, M. Ortiz, and R. A. Radovitzky, 'A cohesive model of fatigue crack growth', *Int. J. Fract.*, vol. 110, pp. 351–369, 2001.
- [94] Y. Xu and H. Yuan, 'Computational modeling of mixed-mode fatigue crack growth in quasi-brittle materials using extended finite element methods', *Int. J. Fract.*, vol. 76, pp. 165–181, 2009.
- [95] Y. Xu and H. Yuan, 'On damage accumulations in the cyclic cohesive zone model for XFEM analysis of mixed-mode fatigue crack growth', *Int. J. Fract.*, vol. 46, pp. 579–585, 2009.
- [96] K. L. Roe and T. Siegmund, 'An irreversible cohesive zone model for interface fatigue crack growth simulation', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 70, pp. 209–232, 2003.
- [97] B. Wang and T. Siegmund, 'A numerical analysis of constraint effects in fatigue crack growth by use of an irreversible cohesive zone model', *Comput. Mater. Sci.*, vol. 132, pp. 175–196, 2005.
- [98] B. Yang, S. Mall, and K. Ravi-Chandar, 'A cohesive zone model for fatigue crack growth in quasibrittle materials', *Int. J. Solids Struct.*, vol. 22, pp. 3927–3944, 2001.
- [99] H. H. M. Cleveringa, E. Van der Giessen, and A. Needleman, 'A discrete dislocation analysis of mode I crack growth', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 48, pp. 1133–1157, 2000.
- [100] V. S. Deshpande, A. Needleman, and E. Van der Giessen, 'A discrete dislocation analysis of near-threshold fatigue crack growth', *Acta materialia*, vol. 49, pp. 3189–3203, 2001.

- [101] V. S. Deshpande, A. Needleman, and E. Van der Giessen, 'Discrete dislocation modeling of fatigue crack propagation', *Acta materialia*, vol. 50, pp. 831–846, 2002.
- [102] F. O. Riemelmoser and R. Pippan, 'Investigation of a growing fatigue crack by means of a discrete dislocation model', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 234, pp. 135–137, 1997.
- [103] S. Brinckmann, T. Siegmund, and Y. Huang, 'A dislocation density based strain gradient model', *Int. J. Plast.*, vol. 22, pp. 1784–1797, 2006.
- [104] S. Brinckmann and T. Siegmund, 'A cohesive zone model based on the micromechanics of dislocations', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 16, p. 65003, 2008.
- [105] J. Segurado and J. Llorca, 'A new three-dimensional interface finite element to simulate fracture in composites', *Int. J. Solids Struct.*, vol. 41 (11-22), pp. 2977–2993, 2004.
- [106] Y. F. Gao and A. F. Bower, 'A simple technique for avoiding convergence problems in finite element simulations of crack nucleation and growth on cohesive interfaces', *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, vol. 12, p. 453, 2004.
- [107] H. Yu, J. S. Olsen, V. Olden, A. Alvaro, J. He, and Z. Zhang, 'Viscous regularization for cohesive zone modeling under constant displacement: An application to hydrogen embrittlement simulation', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 166, pp. 23–42, 2016.
- [108] W. Brocks, R. Falkenberg, and I. Scheider, 'Coupling aspects in the simulation of hydrogen-induced stress-corrosion cracking', *Procedia IUTAM*, vol. 3, pp. 11–24, 2012.
- [109] E. Martínez-Pañeda and C. F. Niordson, 'The role of Geometrically Necessary Dislocations in the fracture process of metallic materials', in *12th International Conference on the Mechanical Behaviour of Materials*, 2015, p. 261.
- [110] M. R. Ayatollahi, A. R. Torabi, and A. S. Rahimi, 'Brittle fracture assessment of engineering components in the presence of notches: A review', *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, vol. 39, no. 3, pp. 267–291, 2016.
- [111] F. J. Gómez and M. Elices, 'A fracture criterion for sharp V-notched samples', *Int. J. Fract.*, vol. 123, no. 3–4, pp. 163–175, 2003.
- [112] F. J. Gómez and M. Elices, 'A fracture criterion for blunted V-notched samples', *Int. J. Fract.*, vol. 127, no. 3, pp. 239–264, 2004.
- [113] F. J. Gómez, G. V Guinea, and M. Elices, 'Failure criteria for linear elastic materials with U-notches', *Int. J. Fract.*, vol. 141, no. 1–2, pp. 99–113, 2006.
- [114] V. Olden, C. Thaulow, R. Johnsen, and E. Ostby, 'Cohesive zone modeling of hydrogen-induced stress cracking in 25% Cr duplex stainless steel', *Ser. Mater.*, vol. 57, no. 7, pp. 615–618, 2007.
- [115] D. A. Cendón, A. R. Torabi, and M. Elices, 'Fracture assessment of graphite V-notched and U-notched specimens by using the cohesive crack model', *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, vol. 38, no. 5, pp. 563–573, 2015.
- [116] W. S. Oates, 'Flexoelectricity, strain gradients, and singularities in ferroelectric nanostructures', *J. Intell. Mater. Syst. Struct.*, p. 1045389X17704985, 2017.

-
- [117] Y. Wei and J. W. Hutchinson, 'steady-state crack growth and work of fracture for solids characterized by strain gradient plasticity, Journal of the Mechanics and Physics of Solids.', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 45, pp. 1253–1273, 1997.
- [118] E. Martínez-Pañeda, S. Natarajan, and S. Bordas, 'Gradient plasticity crack tip characterization by means of the extended finite element method', *Comput. Mech.*, vol. 59, pp. 831–842, 2017.
- [119] S. Brinckmann and T. Siegmund, 'Computations of fatigue crack growth with strain gradient plasticity and an irreversible cohesive zone model', *Eng. Fract. Mech.*, vol. 75, pp. 2276–2294, 2008.
- [120] L. Mazzoni-Leduc, T. Pardoen, and T. J. Massart, 'Strain gradient plasticity analysis of transformation induced plasticity in multiphase steels', *Int. J. Solids Struct.*, vol. 45, pp. 5397–5418, 2008.
- [121] B. N. Legarth and C. F. Niordson, 'Debonding failure and size effects in micro-reinforced composites', *Int. J. Plast.*, vol. 26, pp. 149–165, 2010.
- [122] K. L. Nielsen, C. F. Niordson, and J. W. Hutchinson, 'Rolling at small scales', *J. Manuf. Sci. Eng.*, vol. 138, p. 41004, 2016.
- [123] H. Song, E. Van der Giessen, and X. Liu, 'Strain gradient plasticity analysis of elasto-plastic contact between rough surfaces', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 96, pp. 18–28, 2016.
- [124] C. F. Niordson and V. Tvergaard, 'Size-effects in porous metals', *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, vol. 15, pp. S51–S60, 2007.
- [125] K. E. Aifantis, J. Senger, D. Weygand, and M. Zaiser, 'Discrete dislocation dynamics simulation and continuum modeling of plastic boundary layers in tricrystal micropillars.', *Mater. Sci. Eng.*, vol. 3, p. 12025, 2009.
- [126] M. Calcagnotto, D. Ponge, E. Demir, and D. Raabe, 'Orientation gradients and geometrically necessary dislocations in ultrafine grained dual-phase steels studied by 2D and 3D EBSD', *Mater. Sci. Eng.*, vol. A 527, pp. 2738–2746, 2010.
- [127] H. Gao, and Y. Huang, 'Geometrically necessary dislocation and size-dependent plasticity', *Scr. Mater.*, vol. 48, pp. 113–118, 2003.
- [128] E. Martínez-Pañeda, C. F. Niordson, and L. Bardella, 'A finite element framework for distortion gradient plasticity with applications to bending of thin foils', *Int. J. Solids Struct.*, vol. 96, pp. 288–299, 2016.
- [129] X. Zhang and K. Aifantis, 'Interpreting the internal length scale in strain gradient plasticity', *Rev. Adv. Mater. Sci.*, vol. 41, pp. 72–83, 2015.
- [130] M. Haque and M. T. A. Saif, 'Strain gradient effect in nanoscale thin films', *Acta materialia*, vol. 51, pp. 3053–3061, 2003.
- [131] X. Qian, S. Zhang, S. Swaddiwudhipong, and L. Shen, 'Temperature dependence of material length scale for strain gradient plasticity and its effect on near-tip opening displacement', *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, vol. 37, pp. 157–170, 2014.
- [132] E. Martínez-Pañeda, *Strain Gradient Plasticity-Based modeling of Damage and Fracture*. Springer Theses, 2017.

- [133] N. A. Fleck and J. W. Hutchinson, 'A phenomenological theory for strain gradient effects in plasticity', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 41, pp. 1825–1857, 1993.
- [134] N. A. Fleck and J. W. Hutchinson, 'Strain gradient plasticity. Advances', *Appl. Mech.*, vol. 33, pp. 296–361, 1997.
- [135] N. A. Fleck and J. W. Hutchinson, 'A reformulation of strain gradient plasticity', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 49, pp. 2245–2271, 2001.
- [136] C. F. Niordson and J. W. Hutchinson, 'Non- uniform plastic deformation of micron scale objects', *Int. J. Numer. Methods Eng.*, vol. 56, pp. 961–975, 2003.
- [137] P. Gudmundson, 'A unified treatment of strain gradient plasticity', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 52, pp. 1379–1406, 2004.
- [138] M. E. Gurtin, 'A gradient theory of small-deformation isotropic plasticity that accounts for the Burgers vector and for dissipation due to plastic spin', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 52, pp. 2545–2568, 2004.
- [139] M. E. Gurtin and L. Anand, 'A theory of strain-gradient plasticity for isotropic, plastically irrotational materials. Part I: small deformations', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 53, pp. 1624–1649, 2005.
- [140] A. Acharya and J. L. Bassani, 'On non-local flow theories that preserve the classical tructure of incremental boundary value problems', *Int. J. Plast.*, vol. 20, pp. 3–10, 2004.
- [141] Y. Huang, S. Qu, K. C. Hwang, M. Li, and H. Gao, 'A conventional theory of mechanism-based strain gradient plasticity', *Int. J. Plast.*, vol. 20, pp. 753–782, 2004.
- [142] H. Jiang, Y. Huang, Z. Zhuang, and K. C. Hwang, 'Fracture in mechanism based strain gradient plasticity', *Solid Mech. Its Appl.*, vol. 49, pp. 979–993, 2001.
- [143] C. F. Niordson and J. W. Hutchinson, 'On lower order strain gradient plasticity theories', *Eur. J. Mech. Solids*, vol. 22, pp. 771–778, 2003.
- [144] J. W. Hutchinson, 'Generalizing J2 flow theory: Fundamental issues in strain gradient plasticity', *Acta Mech. Sin.*, vol. 28, pp. 1078–1086, 2012.
- [145] G. Elssner, D. Korn, and M. Ruelhle, 'The influence of interface impurities on fracture energy of UHV diffusion bonded metal-ceramic bicrystals', *Scr. Metall. Materialia*, vol. 31, pp. 1037–1042, 1997.
- [146] D. Korn, G. Elssner, R. M. Cannon, and M. Rühle, 'Fracture properties of interfacially doped Nb-A1 2 O 3 bicrystals', *Acta materialia*, vol. 50, pp. 3881–3901, 2002.
- [147] E. Martínez-Pañeda and C. Betegón, 'Modeling damage and fracture within strain-gradient plasticity', *Int. J. Solids Struct.*, vol. 59, pp. 208–215, 2015.
- [148] E. Martínez-Pañeda and C. F. Niordson, 'On fracture in finite strain gradient plasticity', *Int. J. Plast.*, vol. 80, pp. 154–167, 2016.
- [149] J. Zheng, X. Liu, P. Xu, P. Liu, and J. Yang, 'Development of high pressure gaseous hydrogen storage technologies', *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 3, pp. 1048–1057, 2012.

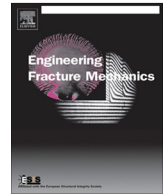
-
- [150] Y. Murakami et al., 'Failure analysis of SUS316L flexible hose for hydrogen station and fatigue life prediction method', *Trans. Japan Soc. Mech. Eng.*, vol. 75, pp. 93–102, 2009.
- [151] R. P. Gangloff and B. P. Somerday, Eds., 'Assessing hydrogen embrittlement in automotive hydrogen tanks', in *Gaseous hydrogen embrittlement of materials in energy technologies: Mechanisms, modelling and future developments*, Cambridge: Woodhead Publishing, 2012, pp. 94–119.
- [152] M. B. Djukic, V. S. Zeravic, G. M. Sedmak, and B. Rajicic, 'Hydrogen damage of steels: A case study and hydrogen embrittlement model', *Eng. Fail. Anal.*, vol. 58, pp. 485–498, 2015.
- [153] G. Papazafeiropoulos, M. Muñiz-Calvente, and E. Martínez-Pañeda, 'Abaqus2Matlab: a suitable tool for finite element post-processing', *Adv. Eng. Softw.*, vol. 105, pp. 9–16, 2017.
- [154] R. P. Gangloff, 'A review and analysis of the threshold for hydrogen environment embrittlement of steel', in *Corrosion Prevention and Control: Proceedings of the 33rd Sagamore Army Materials Research Conference. US Army Laboratory Command, Watertown, MA*, 1986, pp. 64–111.
- [155] H. Tanaka, N. Honma, S. Matsuoka, and Y. Murakami, 'Effect of hydrogen and frequency on fatigue behaviour of SCM435 steel for storage cylinder of hydrogen station', *Trans. Japan Soc. Mech. Eng.*, vol. A 73, pp. 1358–1365, 2007.
- [156] S. Suresh and R. O. Ritchie, 'Mechanistic dissimilarities between environmentally influenced fatigue-crack propagation at near-threshold and higher growth rates in lower strength steels', *Met. Sci.*, vol. 16, pp. 529–538, 1982.
- [157] C. Betegón and J. W. Hancock, 'Two-parameter characterization of elastic-plastic crack-tip fields', *J. Appl. Mech.*, vol. 58, pp. 104–110, 1991.
- [158] C. F. Niordson and P. Redanz, 'Size-effects in plane strain sheet-necking', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 52, pp. 2431–2454, 2004.
- [159] S. X. Mao and M. Li, 'Mechanics and thermodynamics on the stress and hydrogen interaction in crack tip stress corrosion: experiment and theory.', *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 46, pp. 1125–1137, 1998.
- [160] S. del Busto, C. Betegón, and E. Martínez-Pañeda, 'A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue', *Eng. Fract. Mech.*, 2017.
- [161] E. Martínez-Pañeda, S. del Busto, C. F. Niordson, and C. Betegón, 'Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip', *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 41, pp. 10265–10274, 2016.

Paper A: A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue

S. del Busto, C. Betegón, E. Martínez-Pañeda

Engineering Fracture Mechanics

185: 210-226 (2017)



A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue



Susana del Busto^a, Covadonga Betegón^a, Emilio Martínez-Pañeda^{b,*}

^a Department of Construction and Manufacturing Engineering, University of Oviedo, Gijón 33203, Spain

^b Department of Mechanical Engineering, Technical University of Denmark, DK-2800 Kgs. Lyngby, Denmark

ARTICLE INFO

Article history:

Received 6 February 2017

Received in revised form 14 May 2017

Accepted 16 May 2017

Available online 27 May 2017

Keywords:

Hydrogen embrittlement

Cohesive zone models

Hydrogen diffusion

Finite element analysis

Fatigue crack growth

ABSTRACT

We present a compelling finite element framework to model hydrogen assisted fatigue by means of a hydrogen- and cycle-dependent cohesive zone formulation. The model builds upon: (i) appropriate environmental boundary conditions, (ii) a coupled mechanical and hydrogen diffusion response, driven by chemical potential gradients, (iii) a mechanical behavior characterized by finite deformation J2 plasticity, (iv) a phenomenological trapping model, (v) an irreversible cohesive zone formulation for fatigue, grounded on continuum damage mechanics, and (vi) a traction-separation law dependent on hydrogen coverage calculated from first principles. The computations show that the present scheme appropriately captures the main experimental trends; namely, the sensitivity of fatigue crack growth rates to the loading frequency and the environment. The role of yield strength, work hardening, and constraint conditions in enhancing crack growth rates as a function of the frequency is thoroughly investigated. The results reveal the need to incorporate additional sources of stress elevation, such as gradient-enhanced dislocation hardening, to attain a quantitative agreement with the experiments.

© 2017 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Metallic materials play a predominant role in structures and industrial components because of their strength, stiffness, toughness and tolerance of high temperatures. However, hydrogen has been known for over a hundred years to severely degrade the fracture resistance of advanced alloys, with cracking being observed in modern steels at one-tenth of the expected fracture toughness. With current engineering approaches being mainly empirical and highly conservative, there is a strong need to understand the mechanisms of such hydrogen-induced degradation and to develop mechanistic-based models able to reproduce the microstructure-dependent mechanical response at scales relevant to engineering practice.

Models based on the hydrogen enhanced decohesion (HEDE) mechanism have proven to capture the main experimental trends depicted by high-strength steels in aqueous solutions and hydrogen-containing gaseous environments [1]. The use of cohesive zone formulations is particularly appealing in this regard, as they constitute a suitable tool to characterize the sensitivity of the fracture energy to hydrogen coverage. The cohesive traction separation law can be derived from first principles quantum mechanics [2] or calibrated with experiments [3,4]. The statistical distribution of relevant microstructural features has also fostered the use of weakest-link approaches [5,6]. Very recently, Martínez-Pañeda et al. [7] integrated strain gradient plasticity simulations and electrochemical assessment of hydrogen solubility in Gerberich [8] model. The investigation of a Ni-Cu superalloy and a modern ultra-high-strength steel revealed an encouraging quantitative agreement with

* Corresponding author.

E-mail address: mail@empaneda.com (E. Martínez-Pañeda).

Nomenclature

α	compression penalty factor
\bar{V}_H	partial molar volume of hydrogen
β	number of lattice sites per solvent atom
Δg_b^0	Gibbs free energy difference
Δ_n	normal cohesive separation
δ_n	characteristic normal cohesive length
δ_Σ	accumulated cohesive length
C, m	Paris law coefficients
D, D_e	standard and effective diffusion coefficients
\mathcal{N}	strain hardening exponent
\mathcal{R}	universal gas constant
\mathcal{T}	absolute temperature
μ_L	lattice chemical potential
ϕ_n	normal cohesive energy
ρ	density
σ_f	cohesive endurance limit
σ_H	hydrostatic stress
σ_Y	initial yield stress
$\sigma_{\max}, \sigma_{\max,0}$	current and original cohesive strength
θ_H	hydrogen coverage
θ_L, θ_T	occupancy of lattice and trapping sites
ε_p	equivalent plastic strain
$\mathbf{A}, \tilde{\mathbf{A}}$	local field and nodal separation vectors
\mathcal{L}	elastoplastic constitutive matrix
$\boldsymbol{\sigma}$	Cauchy stress tensor
$\boldsymbol{\varepsilon}$	Cauchy strain tensor
\mathbf{B}_c	global cohesive displacement-separation matrix
\mathbf{B}	standard strain-displacement matrix
\mathbf{f}_c	cohesive internal force vector
\mathbf{J}	hydrogen flux vector
\mathbf{K}_c	cohesive tangent stiffness matrix
\mathbf{L}	local displacement-separation matrix
\mathbf{N}	shape functions matrix
\mathbf{R}	rotational matrix
\mathbf{t}	external traction vector
$\mathbf{T}, \tilde{\mathbf{T}}$	standard and effective cohesive traction vectors
\mathbf{U}	global nodal displacement vector
$\mathbf{u}, \tilde{\mathbf{u}}$	field and local nodal displacement vectors
a	crack length
b, b_0	current and initial crack opening displacement
C	total hydrogen concentration
C_L, C_T	hydrogen concentration in lattice and trapping sites
c_q	specific heat capacity
D, D_c, D_m	damage variable: total, cyclic and monotonic
E	Young's modulus
f	load frequency
K, K_0	remote and reference stress intensity factor
K_T	trap equilibrium constant
N	number of cycles
N_A	Avogadro's number
N_L, N_T	number of lattice and trapping sites per unit volume
q	heat flux per unit area
R	load ratio
R_0	reference plastic length
T	elastic T-stress
T_n	normal cohesive traction
U	internal energy per unit mass
V_M	molar volume of the host lattice
W_B	trap binding energy

experimental data for the threshold stress intensity factor and the stage II crack growth rate. However, and despite the fact that most industrial components experience periodic loading, modeling efforts have been mainly restricted to monotonic conditions. Recently, Moriconi et al. [9] conducted experiments and simulations to investigate the role of hydrogen on a 15-5PH martensitic steel intended for gaseous hydrogen storage. Model predictions provided a very good agreement with experimental data for low hydrogen pressures but failed to capture the deleterious effect of hydrogen on the fatigue crack propagation under high pressures. Understanding the role of hydrogen in accelerating crack growth rates under cyclic loading could be crucial to enable the use of high-strength steels in the energy sector and to develop reliable transport and storage infrastructure for future energy systems.

In this work, we present a general numerical framework for hydrogen-assisted fatigue. The main ingredients of the model are: (i) realistic Dirichlet type conditions to account for stress-assisted diffusion at the boundaries, (ii) an extended hydrogen transport equation governed by hydrostatic stresses and plastic straining through trapping, (iii) higher order elements incorporating a coupled mechanical-diffusion response, (iv) continuum large strains elastoplasticity, (v) a hydrogen coverage dependent cohesive strength, and (vi) a Lemaitre-type damage response for an irreversible traction-separation law. The influence of diffusible hydrogen in fatigue crack growth is systematically investigated, the main experimental trends captured and valuable insight achieved.

2. Numerical framework

Hydrogen transport towards the fracture process zone and subsequent cracking under cyclic loading conditions are investigated by means of a coupled mechanical-diffusion-cohesive finite element framework. Section 2.1 describes the mechanical-diffusion coupling that builds upon the analogy with heat transfer, Section 2.2 provides details of the cyclic and hydrogen dependent cohesive zone formulation employed and finally Section 2.3 outlines the general assemblage and implementation.

2.1. Coupled mechanical-diffusion through the analogy with heat transfer

The hydrogen transport model follows the pioneering work by Sofronis and McMeeking [10]. Hence, hydrogen transport is governed by hydrostatic stress and plastic straining through trapping. Hydrogen moves through normal interstitial lattice site diffusion and the diffusible concentration of hydrogen C is defined as the sum of the hydrogen concentrations at reversible traps C_T and lattice sites C_L . The latter is given by,

$$C_L = N_L \theta_L \quad (1)$$

where N_L is the number of sites per unit volume and θ_L the occupancy of lattice sites. The former can be expressed as a function of V_M , the molar volume of the host lattice, as:

$$N_L = \frac{\beta N_A}{V_M} \quad (2)$$

with N_A being Avogadro's number and β the number of interstitial lattice sites per solvent atom. On the other hand, the hydrogen concentration trapped at microstructural defects is given by,

$$C_T = N_T \theta_T \quad (3)$$

where N_T denotes the number of traps per unit volume and θ_T the occupancy of the trap sites. Here, focus will be placed on reversible trapping sites at microstructural defects generated by plastic straining – dislocations; a key ingredient in the mechanics of hydrogen diffusion [11,12]. A phenomenological relation between the trap density and the equivalent plastic strain is established based on the permeation tests by Kumnick and Johnson [14],

$$\log N_T = 23.26 - 2.33 \exp(-5.5 \varepsilon_p) \quad (4)$$

Oriani's equilibrium theory [13] is adopted, resulting in a Fermi–Dirac relation between the occupancy of trap and lattice sites,

$$\frac{\theta_T}{1 - \theta_T} = \frac{\theta_L}{1 - \theta_L} K_T \quad (5)$$

with K_T being the trap equilibrium constant,

$$K_T = \exp\left(\frac{-W_B}{\mathcal{R}\mathcal{T}}\right) \quad (6)$$

Here, W_B is the trap binding energy, \mathcal{R} the gas constant and \mathcal{T} the absolute temperature. Under the common assumption of low occupancy conditions ($\theta_L \ll 1$), the equilibrium relationship between C_T and C_L becomes,

$$C_T = \frac{N_T K_T C_L}{K_T C_L + N_L} \quad (7)$$

In a volume, V , bounded by a surface, S , with outward normal, \mathbf{n} , mass conservation requirements relate the rate of change of C with the hydrogen flux through S ,

$$\frac{d}{dt} \int_V C dV + \int_S \mathbf{J} \cdot \mathbf{n} dS = 0 \quad (8)$$

Fick's law relates the hydrogen flux with the gradient of the chemical potential $\nabla\mu_L$,

$$\mathbf{J} = -\frac{\mathcal{D}C_L}{\mathcal{R}T} \nabla\mu_L \quad (9)$$

with \mathcal{D} being the diffusion coefficient. The chemical potential of hydrogen in lattice sites is given by,

$$\mu_L = \mu_L^0 + \mathcal{R}T \ln \frac{\theta_L}{1 - \theta_L} - \bar{V}_H \sigma_H \quad (10)$$

Here, μ_L^0 denotes the chemical potential in the standard state and the last term corresponds to the so-called stress-dependent part of the chemical potential μ_σ , with \bar{V}_H being the partial molar volume of hydrogen in solid solution. Assuming a constant interstitial sites concentration and substituting (10) into (9), one reaches

$$\mathbf{J} = -\mathcal{D} \nabla C_L + \frac{\mathcal{D}}{\mathcal{R}T} C_L \bar{V}_H \nabla \sigma_H \quad (11)$$

Replacing \mathbf{J} in the mass balance Eq. (8), using the divergence theorem and considering the arbitrariness of V renders,

$$\frac{dC_L}{dt} + \frac{dC_T}{dt} = \mathcal{D} \nabla^2 C_L - \nabla \cdot \left(\frac{\mathcal{D}C_L \bar{V}_H}{\mathcal{R}T} \nabla \sigma_H \right) \quad (12)$$

It is possible to phrase the left-hand side of (12) in terms of C_L by making use of Oriani's theory of equilibrium,

$$\frac{\mathcal{D}}{\mathcal{D}_e} \frac{dC_L}{dt} = \mathcal{D} \nabla^2 C_L - \nabla \cdot \left(\frac{\mathcal{D}C_L \bar{V}_H}{\mathcal{R}T} \nabla \sigma_H \right) \quad (13)$$

where an effective diffusion constant has been defined,

$$\mathcal{D}_e = \mathcal{D} \frac{C_L}{C_L + C_T(1 - \theta_T)} \quad (14)$$

Regarding the boundary conditions, a constant hydrogen concentration C_b is prescribed at the crack faces in the vast majority of hydrogen embrittlement studies. However, as noted by Turnbull [17], such scheme may oversimplify the electrochemistry-diffusion interface and the use of generalized boundary conditions is particularly recommended for materials with high hydrogen diffusivity. Here, we follow Martínez-Pañeda et al. [18] and adopt Dirichlet-type boundary conditions where the lattice hydrogen concentration at the crack faces depends on the hydrostatic stress. Hence, the lattice hydrogen concentration at the crack faces equals,

$$C_L = C_b \exp \left(\frac{\bar{V}_H \sigma_H}{\mathcal{R}T} \right) \quad (15)$$

which is equivalent to prescribing a constant chemical potential. To this end, a user subroutine DISP is employed in ABAQUS to relate the magnitude of C_L to a nodal averaged value of the hydrostatic stress. Also, the domain where the boundary conditions are enforced changes with crack advance. Consequently, a multi-point constraint (MPC) subroutine is defined to update the boundary region throughout the analysis – see Section 2.3.

Finite deformation J2 plasticity theory is used to compute the two mechanical ingredients of the present hydrogen transport scheme, ε_p and σ_H . We develop a fully coupled mass transport – continuum elastoplastic finite element framework that is solved in a monolithic way. Higher order elements are used, with nodal displacements and lattice hydrogen concentration being the primary variables. The numerical implementation is carried out in the well-known finite element package ABAQUS. To this end, a UMATHT subroutine is developed to exploit the analogy with heat transfer [15,16]. Thus, the energy balance for a stationary solid in the absence of heat sources is given by,

$$\int_V \rho \dot{U} dV - \int_S q dS = 0 \quad (16)$$

where ρ is the density, q the heat flux per unit area of the solid and \dot{U} the material time rate of the internal energy, the latter being related to the temperature change through the specific heat capacity: $\dot{U} = c_q \dot{T}$. The similitude with (8) is clear and an appropriate analogy can be easily established (see Table 1), enabling the use of the coupled temperature-displacement capabilities already available in ABAQUS.

Table 1
Analogy between heat transfer and mass diffusion.

Heat transfer	Mass diffusion
$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla q = 0$	$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla J = 0$
$\dot{U} = c_p \dot{T}$	$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial(C_i + C_T)}{\partial t}$
T	C_L
c_p	D/D_c
ρ	1

2.2. Cohesive zone model

A cohesive zone formulation will be employed to model crack initiation and subsequent growth. Based on the pioneering works by Dugdale [19] and Barenblatt [20], cohesive zone models introduce the notion of a cohesive force ahead of the crack that prevents propagation. The micromechanisms of material degradation and failure are thus embedded into the constitutive law that relates the cohesive traction with the local separation. Damage is restricted to evolve along the predefined cohesive interface, and consequently, the numerical implementation is generally conducted by inserting cohesive finite elements in potential crack propagation paths. Hence, in the absence of body forces, the weak form of the equilibrium equations for a body of volume V and external surface S renders,

$$\int_V \boldsymbol{\sigma} : \delta \boldsymbol{\varepsilon} dV + \int_{S_c} \mathbf{T} \cdot \delta \mathbf{A} dS = \int_S \mathbf{t} \cdot \delta \mathbf{u} dS \quad (17)$$

Here, \mathbf{T} are the cohesive tractions and S_c is the surface across which these tractions operate. The standard part of the mechanical equilibrium statement is characterized by the Cauchy stress tensor $\boldsymbol{\sigma}$, the work-conjugate strain tensor $\boldsymbol{\varepsilon}$, the external tractions \mathbf{t} and the displacement vector \mathbf{u} ; the latter being obtained by interpolating the global nodal displacement $\mathbf{u} = \mathbf{N}\mathbf{U}$. The local nodal separation $\tilde{\mathbf{A}}$ is related to the local nodal displacement $\tilde{\mathbf{u}}$ by

$$\tilde{\mathbf{A}} = \mathbf{L}\tilde{\mathbf{u}} \quad (18)$$

where \mathbf{L} is a local displacement–separation relation matrix. The separation along a cohesive surface element is interpolated from the nodal separation by means of standard shape functions,

$$\mathbf{A} = \mathbf{N}\tilde{\mathbf{A}} \quad (19)$$

and the global nodal displacement is related to the local nodal displacement by means of a rotational matrix:

$$\tilde{\mathbf{u}} = \mathbf{R}\mathbf{U} \quad (20)$$

The relationship between the local separation and the global nodal displacement can be then obtained by combining the previous equations,

$$\mathbf{A} = \mathbf{B}_c \mathbf{U} \quad (21)$$

where \mathbf{B}_c is a global displacement–separation relation matrix: $\mathbf{B}_c = \mathbf{N}\mathbf{R}\mathbf{L}$. Thus, accounting for the classic finite element discretization in (17) and requiring the variational statement to hold for any admissible field, it renders

$$\int_V \mathbf{B}^T \mathcal{L} \boldsymbol{\varepsilon} dV + \int_{S_c} \mathbf{B}_c^T \mathbf{T} dS = \int_S \mathbf{N}^T \mathbf{t} dS \quad (22)$$

where \mathcal{L} is the elastoplastic constitutive matrix and \mathbf{B} the standard strain–displacement matrix. Considering the dependence of $\boldsymbol{\varepsilon}$ and \mathbf{T} on \mathbf{U} ,

$$\mathbf{U} \left(\int_V \mathbf{B}^T \mathcal{L} \mathbf{B} dV + \int_{S_c} \mathbf{B}_c^T \frac{\partial \mathbf{T}}{\partial \mathbf{A}} \mathbf{B}_c dS \right) = \int_S \mathbf{N}^T \mathbf{t} dS \quad (23)$$

and the components of the classic finite element global system of equations can be readily identified. The stiffness matrix of the cohesive elements is therefore given by,

$$\mathbf{K}_c = \int_{S_c} \mathbf{B}_c^T \frac{\partial \mathbf{T}}{\partial \mathbf{A}} \mathbf{B}_c dS \quad (24)$$

which corresponds to the gradient of the internal cohesive force vector,

$$\mathbf{f}_c = \int_{S_0} \mathbf{B}_c^T \mathbf{T} dS \quad (25)$$

The pivotal ingredient of cohesive zone models is the traction-separation law that governs material degradation and separation. The exponentially decaying cohesive law proposed by Xu and Needleman [21] is here adopted. Focus will be placed on pure mode I problems and consequently, the constitutive equations related to the tangential separation will be omitted for the sake of brevity. As depicted in Fig. 1, for a given shape of the traction-separation curve, the cohesive response can be fully characterized by two parameters, the cohesive energy ϕ_n and the critical cohesive strength $\sigma_{\max,0}$.

The cohesive response is therefore characterized by the relation between the normal tractions (T_n) and the corresponding displacement jump (A_n) as,

$$T_n = \frac{\phi_n}{\delta_n} \left(\frac{A_n}{\delta_n} \right) \exp \left(-\frac{A_n}{\delta_n} \right) \quad (26)$$

with the normal work of separation ϕ_n being given by,

$$\phi_n = \exp(1) \sigma_{\max,0} \delta_n \quad (27)$$

where δ_n is the characteristic cohesive length under normal separation. The effect of hydrogen in lowering the cohesive strength, and subsequently the fracture toughness, is captured here by employing the impurity-dependent cohesive law proposed by Serebrinsky et al. [2]. Hence, a first-principles-based relation between the *current* cohesive strength σ_{\max} and the original cohesive strength in the absence of hydrogen $\sigma_{\max,0}$ is defined,

$$\frac{\sigma_{\max}(\theta_H)}{\sigma_{\max,0}} = 1 - 1.0467\theta_H + 0.1687\theta_H^2 \quad (28)$$

where θ_H is the hydrogen coverage, which is defined as a function of hydrogen concentration and Gibbs free energy difference between the interface and the surrounding material, as expressed in the Langmuir-McLean isotherm:

$$\theta_H = \frac{C}{C + \exp \left(\frac{-\Delta g_b^0}{RT} \right)} \quad (29)$$

A value of 30 kJ/mol is assigned to the trapping energy Δg_b^0 in [2] from the spectrum of experimental data available. Thus, from first principles calculations of hydrogen atoms in bcc Fe, a quantum-mechanically informed traction-separation law can be defined as a function of the hydrogen coverage [2] (see Fig. 2).

On the other hand, cyclic damage is incorporated by means of the irreversible cohesive zone model proposed by Roe and Siegmund [22]. The model incorporates (i) loading–unloading conditions, (ii) accumulation of damage during sub-critical cyclic loading, and (iii) crack surface contact. A damage mechanics approach is adopted to capture the cohesive properties degradation as a function of the number of cycles. A damage variable D is defined so that it represents the effective surface density of micro defects in the interface. Consequently, an effective cohesive zone traction can be formulated: $\tilde{T} = T/(1 - D)$. Subsequently, the current or effective cohesive strength σ_{\max} is related to the initial cohesive strength $\sigma_{\max,0}$ as,

$$\sigma_{\max} = \sigma_{\max,0}(1 - D) \quad (30)$$

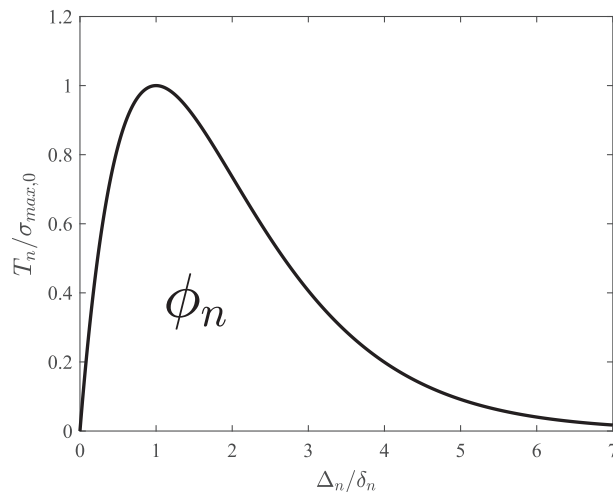


Fig. 1. Traction-separation law characterizing the cohesive zone model in the absence of cyclic loading and hydrogen degradation.

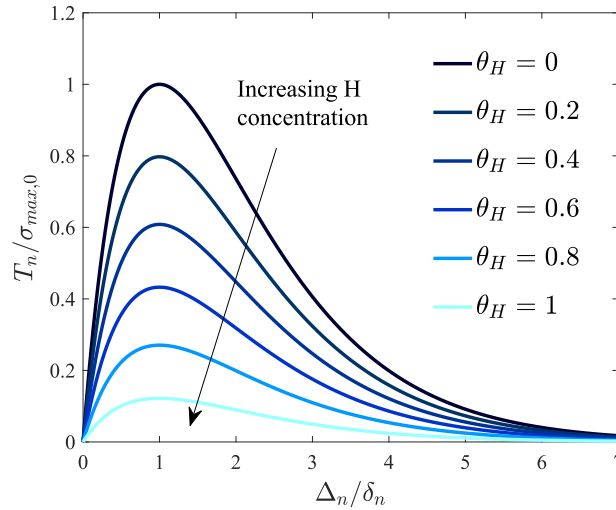


Fig. 2. Effect of hydrogen coverage θ_H on the traction-separation law characterizing the cohesive response.

A damage evolution law is defined so that it incorporates the relevant features of continuum damage approaches, namely: (i) damage accumulation starts if a deformation measure is greater than a critical magnitude, (ii) the increment of damage is related to the increment of deformation, and (iii) an endurance limit exists, below which cyclic loading can proceed infinitely without failure. From these considerations, cyclic damage evolution is defined as,

$$\dot{D}_c = \frac{|\dot{A}_n|}{\delta_\Sigma} \left[\frac{T_n}{\sigma_{\max}} - \frac{\sigma_f}{\sigma_{\max,0}} \right] H(\bar{A}_n - A_n) \quad (31)$$

with $\bar{A}_n = \int |\dot{A}_n| dt$ and H denoting the Heaviside function. Two new parameters have been introduced: σ_f , the cohesive endurance limit and δ_Σ , the accumulated cohesive length – used to scale the normalized increment of the effective material separation. The modeling framework must also incorporate damage due to monotonic loading; as a consequence, the damage state is defined as the maximum of the cyclic and monotonic contributions,

$$D = \int \max(\dot{D}_c, \dot{D}_m) dt \quad (32)$$

being the latter characterized as:

$$\dot{D}_m = \frac{\max(A_n)|_{t_i} - \max(A_n)|_{t_{i-1}}}{4\delta_n} \quad (33)$$

and updated only when the largest stored value of A_n is greater than δ_n . Here, t_{i-1} denotes the previous time increment and t_i the current one. In addition to damage evolution, the cohesive response must be defined for the cases of unloading/reloading, compression, and contact between the crack faces. Unloading is defined based on the analogy with an elastic–plastic material undergoing damage. Thereby, unloading takes place with the stiffness of the cohesive zone at zero separation, such that

$$T_n = T_{\max} + \left(\frac{\exp(1)\sigma_{\max}}{\delta_n} \right) (A_n - A_{\max}) \quad (34)$$

where A_{\max} is the maximum separation value that has been attained and T_{\max} its associated traction quantity. Compression behavior applies when the unloading path reaches $A_n = 0$ at $T_n < 0$. In such circumstances, the cohesive response is given by,

$$T_n = \frac{\phi_n}{\delta_n} \left(\frac{A_n}{\delta_n} \right) \exp\left(-\frac{A_n}{\delta_n}\right) + T_{\max} - \sigma_{\max} \exp(1) \frac{A_{\max}}{\delta_n} + \alpha \sigma_{\max,0} \exp(1) \frac{A_n}{\delta_n} \exp\left(-\frac{A_n}{\delta_n}\right) \quad (35)$$

being α a penalty factor that is taken to be equal to 10, following [22]. Contact conditions are enforced if A_n is negative and the cohesive element has failed completely ($D = 1$). At this instance the cohesive law renders,

$$T_n = \alpha \sigma_{\max,0} \exp(1) \exp\left(-\frac{A_n}{\delta_n}\right) \frac{A_n}{\delta_n} \quad (36)$$

where friction effects have been neglected. Fig. 3 shows a representative response obtained by applying a stress-controlled cyclic loading $\Delta\sigma/\sigma_{\max,0} = 1$ with a zero stress ratio. The accumulated separation increases with the number of loading cycles, so that it becomes larger than δ_n and damage starts to play a role, lowering the stiffness and the cohesive strength.

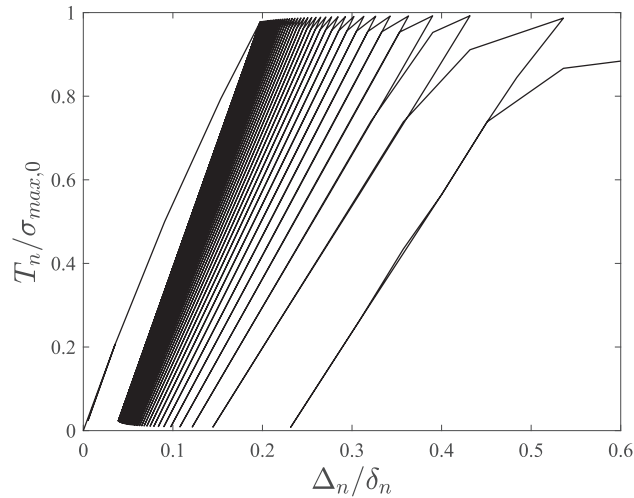


Fig. 3. Cohesive response under stress-controlled cyclic loading conditions.

This novel cyclic- and hydrogen concentration-dependent cohesive zone framework is implemented in ABAQUS by means of a user element UEL subroutine. The code can be downloaded from www.empaneda.com/codes and is expected to be helpful to both academic researchers and industry practitioners.

In some computations, numerical convergence is facilitated by employing the viscous regularization technique proposed by Gao and Bower [23]. Such scheme leads to accurate results if the viscosity coefficient, ξ , is sufficiently small [4]. A sensitivity study has been conducted in the few cases where viscous regularization was needed; values of ξ on the order of 10^{-6} have proven to be appropriate for the boundary value problem under consideration. Other approaches to overcome snap-back instabilities, less suitable for cyclic loading, include the use of explicit finite element solution schemes [24] or determining the equilibrium path for a specified crack tip opening by means of control algorithms [25–27].

2.3. Finite element implementation

The aforementioned mechanical-diffusion-cohesive numerical framework is implemented in the commercial finite element package ABAQUS. Fortran modules are widely employed to transfer information between the different user subroutines. Thus, as described in Fig. 4, a user material UMAT subroutine is developed to characterize the mechanical response by means of a finite strain version of conventional von Mises plasticity. The nodal averaged value of the hydrostatic stress at the crack faces is then provided to a DISP subroutine, so as to prescribe a more realistic σ_H -dependent lattice hydrogen concentration. The hydrostatic stress gradient is computed by means of linear shape functions and, together with the equivalent plastic strain, is afterward given as input to the UMATHT subroutine to capture the effects of chemical expansion and trapping. The UMATHT subroutine provides the cohesive elements with the diffusible concentration of hydrogen in their adjacent continuum element. The damage variable is then transferred from the user elements to the MPC subroutine to keep track of the crack extension. Multi-point constraints have been defined between the nodes ahead of the crack and a set of associated dummy nodes that are activated as the crack advances. Hydrogen diffusion is assumed to be instantaneous, such that the lattice hydrogen concentration at the boundary is immediately prescribed when a new portion of crack surface is available.

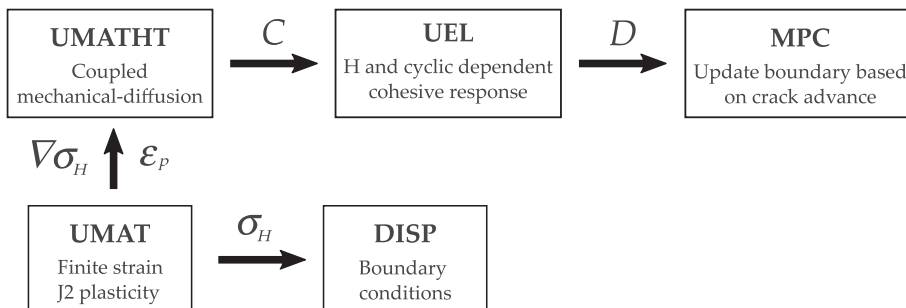


Fig. 4. Schematic overview of the relations between the different Abaqus subroutines.

Higher order elements are used in all cases: 8-node quadrilateral elements with reduced integration are employed to model the bulk response, and crack initiation and growth are captured by 6-node quadrilateral cohesive elements with 12 integration points. Results post-processing is carried out in MATLAB by making use of *Abaqus2Matlab* [28], a novel tool that connects the two aforementioned well-known software suites.

3. Results

We investigate the pernicious effect of hydrogen in fatigue crack growth, of great relevance in both energy storage and transport. The synergistic interaction of cyclic plastic deformation and local hydrogen uptake is particularly detrimental, with catastrophic failure being observed in cases where hydrogen-assisted cracking is negligible under monotonic loading [29].

The boundary layer model employed by Sofronis and McMeeking [10] is taken as a benchmark. Hence, hydrogen transport and subsequent cracking are investigated in an iron-based material with a diffusion coefficient of $\mathcal{D} = 0.0127 \text{ mm}^2/\text{s}$, Young's modulus of $E = 207 \text{ GPa}$, Poisson's ratio of $\nu = 0.3$ and initial yield stress of $\sigma_Y = 250 \text{ MPa}$. Work hardening is captured by means of the following isotropic power law,

$$\sigma = \sigma_Y \left(1 + \frac{E \varepsilon_p}{\sigma_Y} \right)^{\mathcal{N}} \quad (37)$$

with the strain hardening exponent being equal to $\mathcal{N} = 0.2$. Isotropic hardening has been adopted to reproduce the conditions of [10], but one should note that other plastic flow models can be easily incorporated; the use of non-linear kinematic hardening laws is particularly convenient to appropriately capture the Bauschinger effect under low load ratios. As described in Fig. 5, the crack region is contained within a circular zone and a remote Mode I load is applied by prescribing the displacements of the nodes at the outer boundary,

$$u(r, \theta) = K_I \frac{1 + \nu}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) (3 - 4\nu - \cos\theta) \quad (38)$$

$$v(r, \theta) = K_I \frac{1 + \nu}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) (3 - 4\nu - \cos\theta) \quad (39)$$

where u and v are the horizontal and vertical components of the displacement boundary condition, r and θ the radial and angular coordinates of each boundary node in a polar coordinate system centered at the crack tip, and K_I is the applied stress intensity factor that quantifies the remote load in small scale yielding conditions. The lattice hydrogen concentration is prescribed in the crack surface as a function of σ_H and the boundary concentration in the absence of hydrostatic stresses C_b . Following [10], an initial bulk concentration equal to C_b is also defined in the entire specimen at the beginning of the analysis. Only the upper half of the circular domain is modeled due to symmetry and the outer radius is chosen to be significantly larger than the initial crack tip blunting radius. As shown in Fig. 5, a very refined mesh is used, with the characteristic element size in the vicinity of the crack, l_e , being significantly smaller than a reference plastic length,

$$R_0 = \frac{1}{3\pi(1 - \nu^2)} \frac{E \phi_n}{\sigma_Y^2} \quad (40)$$

($2000l_e < R_0$). A sensitivity study is conducted to ensure that the mesh resolves the cohesive zone size – approximately 14,000 quadrilateral 8-node plane strain elements are employed. The modeling framework is suitable for both low and high cycle fatigue, with computations of 10^4 cycles (with at least 10 load increments per cycle) running overnight on a single core.

We first validate the coupled mechanical-diffusion implementation by computing crack tip fields under monotonic loading conditions in the absence of crack propagation. Thus, the load is increased from zero at a rate of $21.82 \text{ MPa} \sqrt{\text{mm}} \text{ s}^{-1}$ for 130 s and held fixed afterward, when the crack opening displacement is approximately 10 times the initial blunting radius $b = 5b_0 = 10r_0$. Fig. 6(a) shows the estimated hydrostatic stress distribution along with the predictions by Sofronis and McMeeking [10] (symbols); results are shown along the extended crack plane with the distance to the crack tip normalized by the current crack tip opening b . A very good agreement is observed, verifying the finite strains J2 plasticity implementation. Fig. 6(b) shows the results obtained for the lattice and trapped hydrogen concentrations for a boundary concentration of $C_b = 2.08 \cdot 10^{12} \text{ H atoms/mm}^3$ at 130 s and after reaching steady-state conditions. The quantitative response described by the lattice hydrogen concentration when accounting for the dilatation of the lattice significantly differs to that obtained prescribing a constant C_L , as highlighted by Di Leo and Anand [30] in the context of their constant lattice chemical potential implementation. The results achieved by means of the present σ_H -dependent Dirichlet scheme accurately follow the analytical steady-state solution for the distribution of the lattice hydrogen concentration ahead of the crack. On the other hand, C_T shows a high peak at the crack tip and negligible sensitivity to the diffusion time (the curves for 130 s and steady state fall on top of each other); this is due to the governing role of plastic deformation as a result of the direct proportional relationship between C_T and N_T .

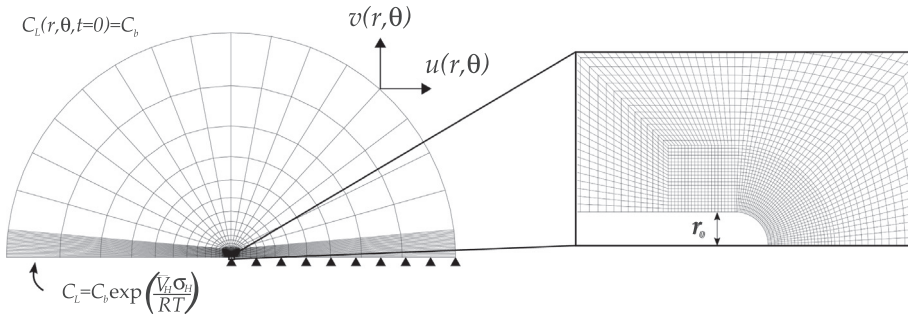


Fig. 5. General and detailed representation of the finite element mesh employed for the boundary layer model. Mechanical and diffusion boundary conditions are shown superimposed.

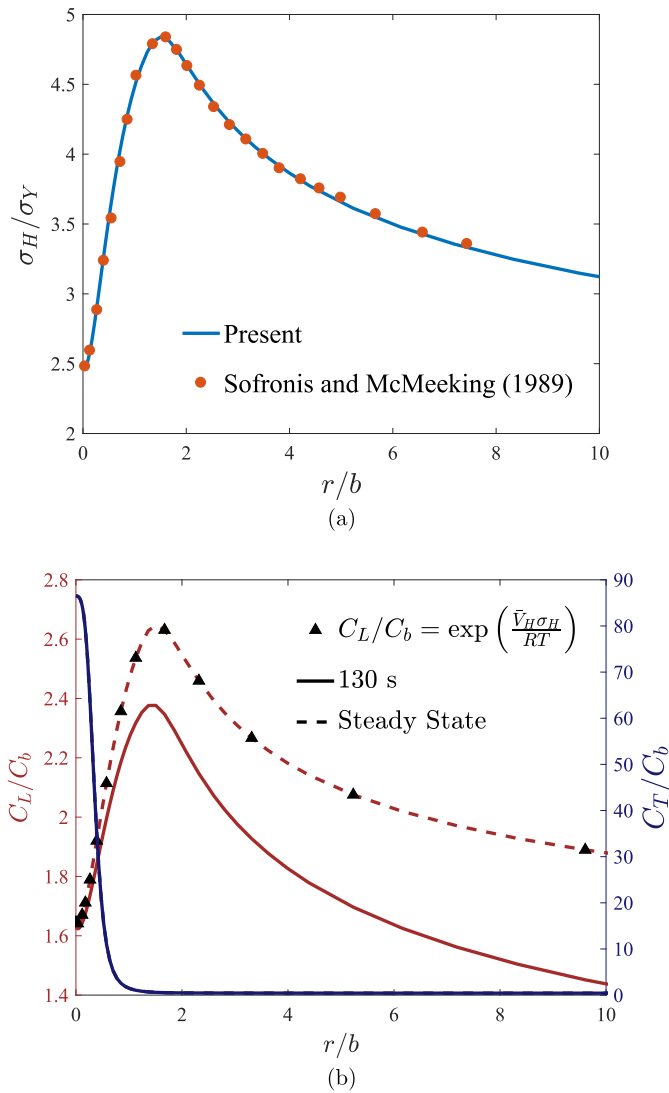


Fig. 6. Crack tip fields for a stationary crack in an iron-based material under monotonic loading conditions, (a) normalized hydrostatic stress distribution for $K_I = 2836.7 \text{ MPa}\sqrt{\text{mm}}$ and (b) lattice and trap sites hydrogen concentrations at steady state and after 130 s.

Environmentally assisted fatigue is subsequently investigated by scaling in time the external load by a sinusoidal function. The cyclic boundary conditions prescribed are characterized by the load amplitude $\Delta K = K_{\max} - K_{\min}$ and the load ratio

$R = K_{\min}/K_{\max}$. An initial prestressing is defined, such that the mean load equals the load amplitude, and both R and ΔK remain constant through the analysis.

Following [22], the accumulated cohesive length in (31) is chosen to be $\delta_{\Sigma} = 4\delta_n$ and the endurance coefficient $\sigma_f/\sigma_{\max,0} = 0.25$. The initial cohesive strength is assumed to be equal to $\sigma_{\max,0} = 3.5\sigma_Y$ based on the seminal work by Tvergaard and Hutchinson [31]. One should, however, note that such magnitude is intrinsically associated with the stress bounds of conventional plasticity – more realistic values can be obtained if the role of the increased dislocation density associated with large gradients in plastic strain near the crack tip is accounted for [27,32]. A reference stress intensity factor,

$$K_0 = \sqrt{\frac{E\phi_n}{(1-\nu^2)}} \tag{41}$$

is defined to present the results.

The capacity of the model to capture the sensitivity of fatigue crack growth rates to a hydrogenous environment is first investigated by computing the crack extension Δa as a function of the number of cycles for different values of C_L at the boundary. Fig. 7 shows the results obtained for a load ratio of $R = 0.1$ and frequency of 1 Hz. The magnitude of the load ratio

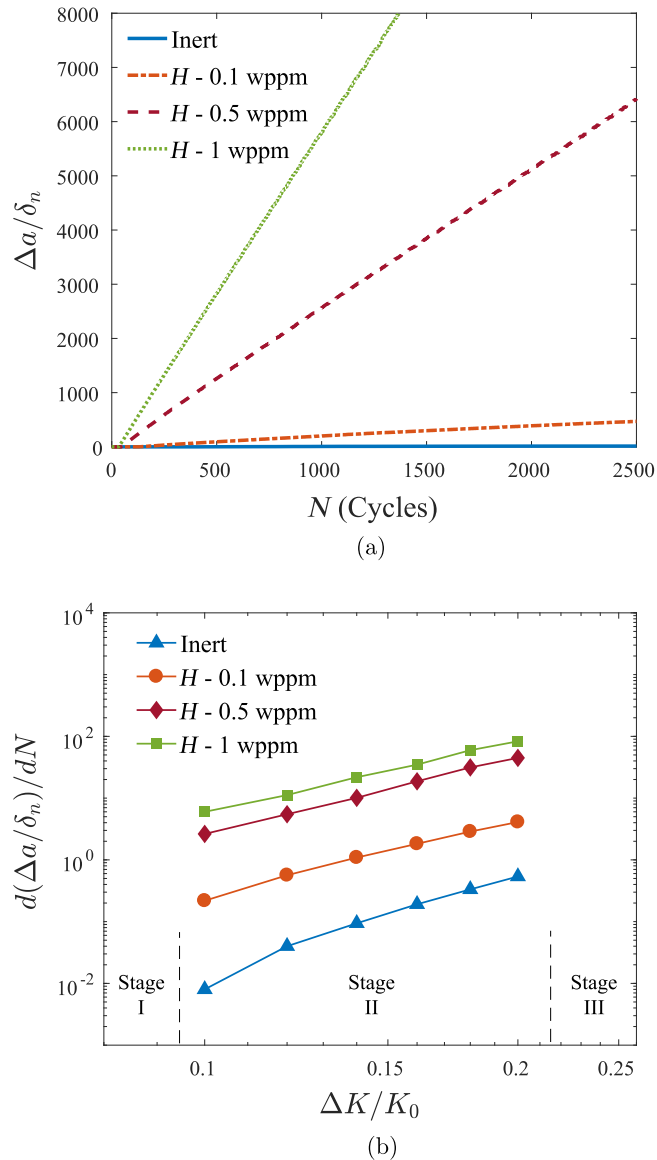


Fig. 7. Predicted influence of the environment on (a) crack extension versus number of cycles for $\Delta K/K_0 = 0.1$ and (b) fatigue crack growth rate versus load amplitude. Results have been obtained for an iron-based material under a load ratio of $R = 0.1$ and frequency of $f = 1$ Hz

is appropriate for applications in the context of hydrogen-fueled vehicles, where load ratios between $R = 0.1$ and $R = 0.2$ accurately characterize the mechanical stresses resulting from filling cycles. Results reveal a strong influence of the environment, with crack propagation rates increasing significantly with the hydrogen content; the model appropriately captures the deleterious effect of hydrogen on crack growth resistance under cyclic loading conditions.

Lattice hydrogen concentrations at the boundary range from 1 wppm ($4.68 \cdot 10^{15}$ H atoms/mm³), which corresponds to a 3% NaCl aqueous solution [33], to 0.1 wppm. The important role of hydrogen in the fatigue crack growth behavior can be clearly observed in the crack growth versus crack amplitude curves (Fig. 7(b)). By making use of the well-known Paris equation [34]:

$$\frac{da}{dN} = C \Delta K^m \quad (42)$$

one can easily see that C significantly increases with the environmental hydrogen content, in agreement with the experimental trends. On the other hand, results render a Paris exponent that shows little sensitivity to the hydrogen concentration, falling in all cases within the range of experimentally reported values for metals in inert environments ($m \approx 4$). The cycle-dependent contribution of the environment manifests significantly, while the influence of C_b as ΔK increases is governed by a trade-off between larger levels of equivalent plastic strain (increasing C_T and subsequently C) and shorter diffusion times due to greater crack growth rates. Thus, for a given frequency, the effect of hydrogen on the slope of the da/dN versus ΔK curve depends heavily on the diffusion and mechanical properties of the material under consideration. The sensitivity of a steel to hydrogen embrittlement is therefore bounded between two limit cases: (a) *slow tests*, where the testing time significantly exceeds the diffusion time for hydrogen within the specimen, and (b) *fast tests*, where the testing time is much less than the diffusion time. In the former bound, hydrogen atoms accumulate in the fracture process zone and the distribution of lattice hydrogen concentration is governed by Eq. (15). For sufficiently rapid tests the initial (pre-charged) hydrogen concentration and the contributions from reversible microstructural traps dominate the response. As a consequence, experiments reveal a relevant increase in da/dN with decreasing frequency until an upper bound is reached where the load-cycle duration is sufficient to allow hydrogen to diffuse and fully saturate the crack tip fracture process zone [35].

We subsequently investigate the influence of the loading frequency. A normalized frequency is defined as,

$$\bar{f} = \frac{fR_0^2}{D} \quad (43)$$

so as to quantify the competing influence of test and diffusion times. Fig. 8(a) shows crack growth resistance curves obtained for the iron-based material under consideration in the aforementioned asymptotic limits – *slow tests* ($\bar{f} \rightarrow 0$) and *fast tests* ($\bar{f} \rightarrow \infty$). In agreement with expectations, crack propagation is enhanced by larger testing times but results reveal very little sensitivity to the loading frequency, as opposed to experimental observations. Fig. 8(b) provides the basis for the understanding of the small susceptibility of crack growth rates to the loading frequency; the C_l elevation in the σ_H -dominated case is less than 10% of the lattice hydrogen concentration in the *fast test*.

The difference between the two limiting cases is governed by the exponential dependence of the lattice hydrogen concentration to hydrostatic stresses ahead of the crack, given the independence of the trap density to the loading frequency in Sofronis and McMeeking's [10] framework. Since the maximum level of σ_H is load-independent in finite strain J2 plasticity [36], we investigate the influence of yield strength, strain hardening and triaxiality conditions in providing a response closer to the experimental observations.

The role of the yield strength is first investigated by considering a high-strength steel with $\sigma_Y = 1200$ MPa and otherwise identical properties as the iron-based material assessed so far. As shown in Fig. 9(a), a considerably larger effect of the loading frequency is observed, even without the need of considering the two limiting cases. The lattice hydrogen concentration ahead of the crack tip is shown in Fig. 9(b); results reveal a much larger stress elevation when compared to the low-strength case (Fig. 8(b)).

The increase in fatigue crack growth rates with decreasing frequency is quantified in Fig. 10. Again, the model qualitatively captures the main experimental trends; low loading frequencies enable hydrogen transport to the fracture process zone, augmenting crack propagation rates. This da/dN -dependence with frequency reaches a plateau when approaching the two limiting responses, a clear transition between the upper and lower bounds can be observed. However, crack growth rates on the lower frequency bound are less than 1.5 times the values attained when da/dN levels out at high loading frequencies; these quantitative estimations fall significantly short of reaching the experimentally reported differences. A 5–10 times crack growth rate elevation has been observed when decreasing frequency in a mid-strength martensitic SCM435 steel [37], and similar data have been obtained for a 2.25Cr1Mo (SA542-3) pressure vessel steel [38] and an age-hardened 6061 aluminum alloy [39], among many other (see, e.g., the review by Murakami [35]).

The gap between the maximum and minimum da/dN levels can also be affected by the strain hardening of the material under consideration. We, therefore, estimate the fatigue crack growth rates as a function of the loading frequency for three different strain hardening exponents. As shown in Fig. 11, higher values of \mathcal{N} lead to higher crack propagation rates. This comes as no surprise as larger strain hardening exponents translate into higher stresses. However, the da/dN -elevation is not very sensitive to the range of loading frequencies examined. The effect of the stress elevation due to larger \mathcal{N} values could be attenuated by the intrinsic reduction of the plastic strain contribution to N_f . One should, however, note that, for

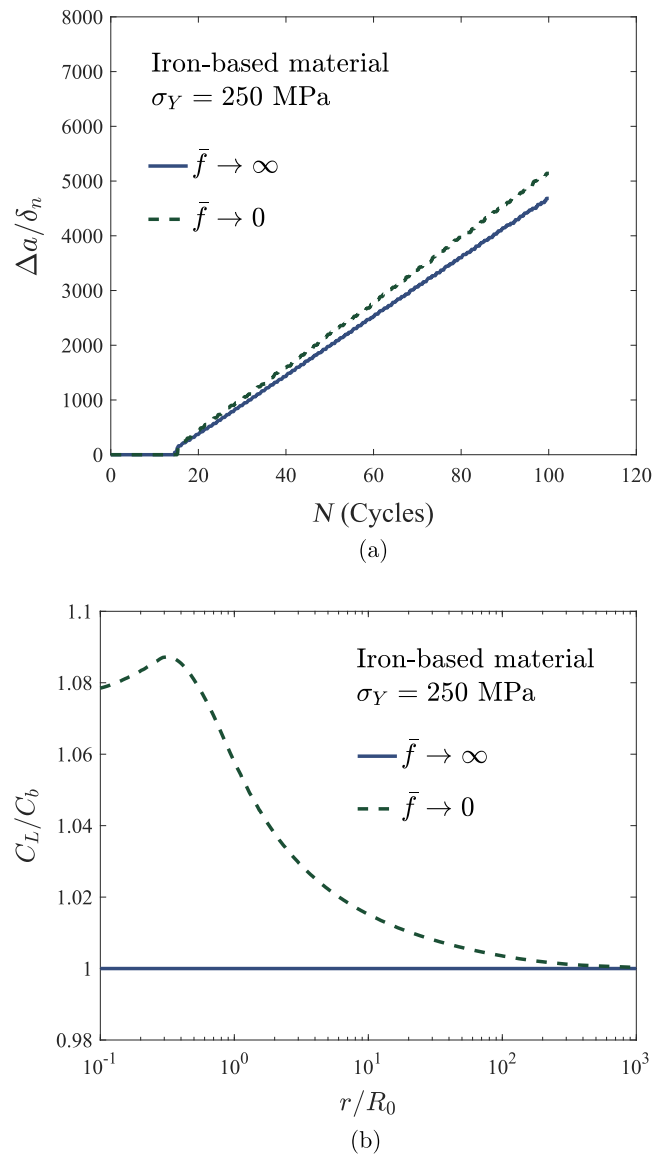


Fig. 8. Influence of the frequency in an iron-based material: (a) crack extension versus number of cycles, and (b) lattice hydrogen distribution ahead of the crack at the maximum ΔK and for a crack extension of $\Delta a / R_0 = 0.8$. Results have been obtained for $\Delta K / K_0 = 0.2$, under a load ratio of $R = 0.1$ and an external hydrogen concentration of $C_b = 1$ wppm.

the present choice of cohesive parameters, cracking takes place without significant plastic deformation. A different choice will probably increase the differences between the two limiting cases but highly unlikely to the level required to attain a quantitative agreement with the experiments.

Crack tip constraint conditions are also expected to play a role in augmenting crack growth rates in sufficiently slow tests. Here, we make use of the elastic T -stress [40] to prescribe different triaxiality conditions by means of what is usually referred to as a modified boundary layer. Hence, the displacements at the remote boundary now read,

$$u(r, \theta) = K_I \frac{1 + \nu}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) (3 - 4\nu - \cos\theta) + T \frac{1 - \nu^2}{E} r \cos\theta \quad (44)$$

$$v(r, \theta) = K_I \frac{1 + \nu}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) (3 - 4\nu - \cos\theta) - T \frac{\nu(1 + \nu)}{E} r \sin\theta \quad (45)$$

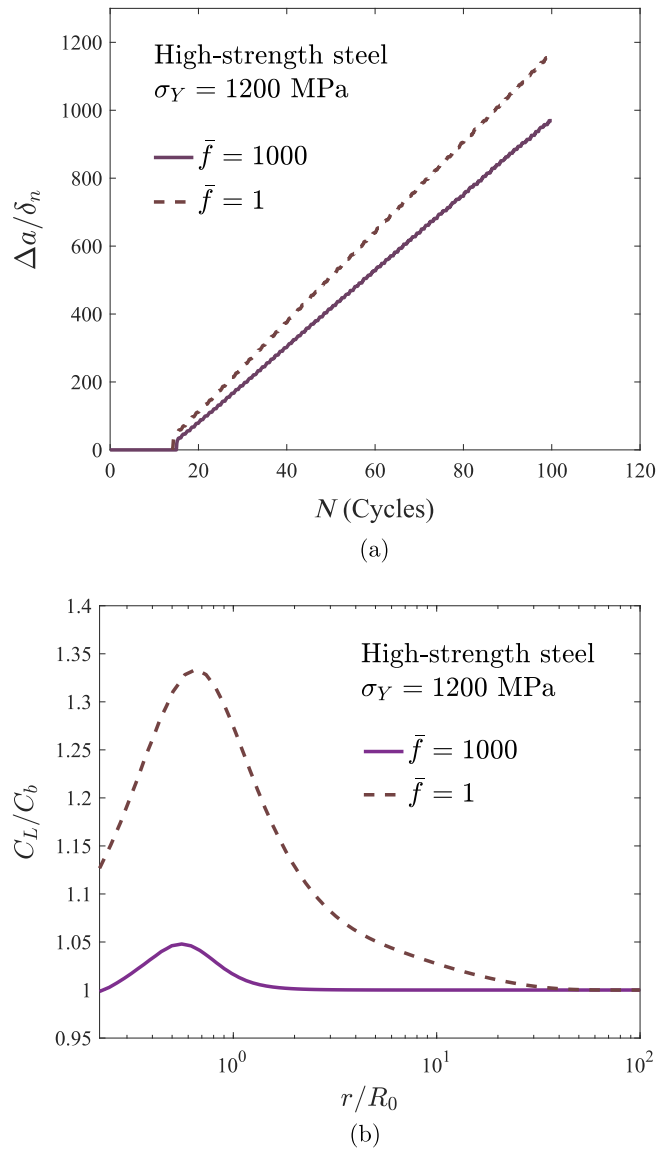


Fig. 9. Influence of the frequency in a high-strength steel: (a) crack extension versus number of cycles, and (b) lattice hydrogen distribution ahead of the crack at the maximum ΔK and for a crack extension of $\Delta a/R_0 = 0.6$. Results have been obtained for $\Delta K/K_0 = 0.2$, under a load ratio of $R = 0.1$ and an external hydrogen concentration of $C_b = 1$ wppm.

Fig. 12 shows the sensitivity of da/dN to the loading frequency under different constraint conditions. We restrict our attention to positive values of the T -stress, as lower triaxialities will not contribute to increasing crack growth rates in the lower frequency bound. Results reveal a substantial increase of da/dN with increasing crack tip constraint. However, the influence on the ratio between the crack propagation rates for *slow* and *fast* tests is almost negligible.

Results provide a mechanistic interpretation of the reduction in fatigue crack resistance with decreasing frequency observed in the experiments. By properly incorporating the kinetics of hydrogen uptake into the fracture process zone, model predictions can be employed to identify the critical frequency above which the time per load cycle is insufficient for diffusible hydrogen to degrade the crack growth resistance. Accurate estimations are however hindered by the lack of quantitative agreement with experimental data regarding the impact of loading frequency on da/dN . Tests conducted at the low-frequency bound lead to crack growth rates that are 5–10 times larger than the values attained in experiments with a duration much shorter than the diffusion time. Such differences cannot be attained in the framework of conventional J2 plasticity, where the peak σ_H (on the order of $5\sigma_Y$) is insufficient to draw in sufficient levels of hydrogen to cause a 5-fold increase in da/dN . Crack growth rates at low loading frequencies increase with yield strength, material hardening

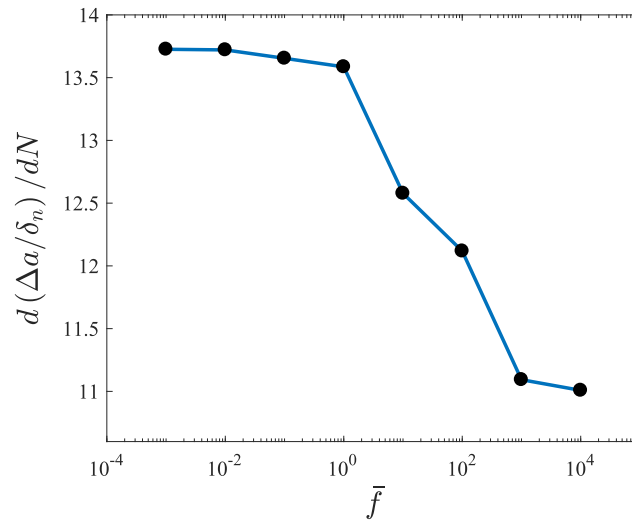


Fig. 10. Fatigue crack growth rate versus normalized frequency in a high-strength steel. Results have been obtained for $\Delta K/K_0 = 0.2$, under a load ratio of $R = 0.1$ and an external hydrogen concentration of $C_b = 1$ wppm.

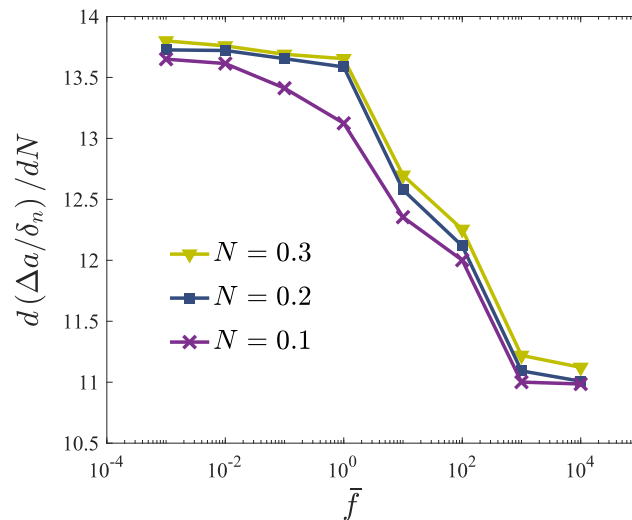


Fig. 11. Fatigue crack growth rate versus normalized frequency in high-strength steel for different strain hardening exponents. Results have been obtained for $\Delta K/K_0 = 0.2$, under a load ratio of $R = 0.1$ and an external hydrogen concentration of $C_b = 1$ wppm.

and constraint conditions, but not even the most critical combination of these parameters appears to provide a quantitative agreement with a phenomenon that is observed in a wide range of metallic alloys and testing configurations. Additional sources of stress elevation are therefore needed to provide a reliable characterization of environmentally assisted fatigue for different frequencies. One possibility lies on the large gradients of plastic strain present in the vicinity of the crack, which exacerbate dislocation density and material strength. Geometrically necessary dislocations (GNDs) arise in large numbers to accommodate lattice curvature due to non-uniform plastic deformation, and act as obstacles to the motion of *conventional* statistically stored dislocations. Strain gradient plasticity theories have been developed to extend plasticity theory to the small scales by incorporating this dislocation storage phenomenon that significantly contributes to material hardening (see [41] and references therein). Gradient plasticity models have been consistently used to characterize behavior at the small scales involved in crack tip deformation, predicting a much higher stress level than classic plasticity formulations (see, e.g., [42,43]). This stress elevation due to dislocation hardening has proven to play a fundamental role in fatigue [44,45] and hydrogen-assisted cracking [7,46].

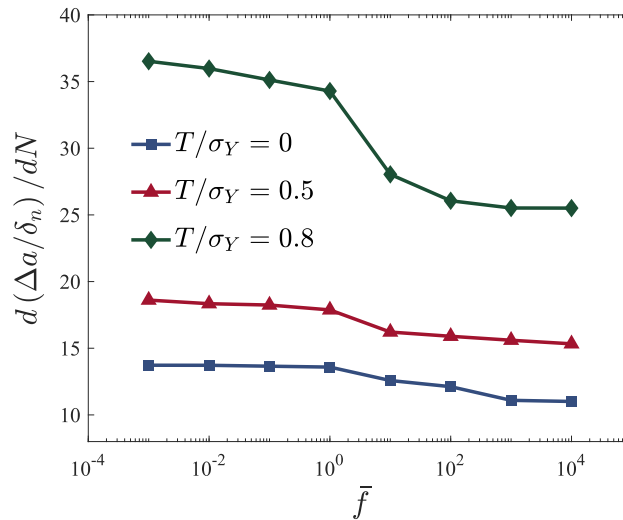


Fig. 12. Fatigue crack growth rate versus normalized frequency in high-strength steel for different constraint conditions. Results have been obtained for $\Delta K/K_0 = 0.2$, under a load ratio of $R = 0.1$ and an external hydrogen concentration of $C_b = 1$ wppm.

4. Conclusions

We propose a predictive cohesive modeling framework for corrosion fatigue. The model is grounded on the mechanism of hydrogen embrittlement, which governs fatigue crack initiation and subsequent propagation in a wide range of metallic alloys exposed to gasses and electrolytes. Mechanical loading and hydrogen transport are coupled through lattice dilatation due to hydrostatic stresses and the generation of traps by plastic straining. An irreversible cohesive zone model is employed to capture material degradation and failure due to cyclic loads. The impact of the hydrogen coverage in the cohesive traction is established from first principles quantum mechanics. Finite element analysis of a propagating crack reveals a relevant increase in crack growth rates with (i) hydrogen content in the surrounding environment and (ii) decreasing load frequency; in agreement with experimental observations. A robust and appropriate numerical model for hydrogen-assisted fatigue opens up many possibilities, enabling rapid predictions that could be key to risk quantification in industrial components. Moreover, important insight can be gained into the mechanisms at play, identifying the relevant variables and their critical magnitudes for a given material, environment and loading scenario.

The influence of the yield strength, work hardening and constraint conditions is extensively investigated aiming to quantitatively reproduce the relation between the loading frequency and the crack growth rates observed in the experiments. Results reveal the need to incorporate additional sources of stress elevation to sufficiently enhance hydrogen uptake into the fracture process zone. Future work will focus on extending the present scheme to encompass the role of geometrically necessary dislocations through strain gradient plasticity formulations.

Acknowledgments

The authors gratefully acknowledge financial support from the Ministry of Economy and Competitiveness of Spain through grant MAT2014-58738-C3. E. Martínez-Pañeda additionally acknowledges financial support from the People Programme (Marie Curie Actions) of the European Union's Seventh Framework Programme (FP7/2007-2013) under REA grant agreement n° 609405 (COFUNDPostdocDTU).

References

- [1] Gangloff RP. Hydrogen-assisted cracking in high-strength alloys. *Comprehensive structural integrity, environmentally-assisted fracture*, vol. 6. Oxford: Elsevier; 2003.
- [2] Serebrinsky S, Carter EA, Ortiz M. A quantum-mechanically informed continuum model of hydrogen embrittlement. *J Mech Phys Solids* 2004;52:2403–30.
- [3] Scheider I, Puff M, Dietzel W. Simulation of hydrogen assisted stress corrosion cracking using the cohesive model. *Eng Fract Mech* 2008;75:4283–91.
- [4] Yu H, Olsen JS, Alvaro A, Olden V, He J, Zhang Z. A uniform hydrogen degradation law for high strength steels. *Eng Fract Mech* 2016;157:56–71.
- [5] Novak P, Yuan R, Somerdar BP, Sofronis P, Ritchie RO. A statistical, physical-based, micro-mechanical model of hydrogen-induced intergranular fracture in steel. *J Mech Phys Solids* 2010;58:206–26.
- [6] Ayas C, Deshpande VS, Fleck NA. A fracture criterion for the notch strength of high strength steels in the presence of hydrogen. *J Mech Phys Solids* 2014;63:80–93.
- [7] Martínez-Pañeda E, Niordson CF, Gangloff RP. Strain gradient plasticity-based modeling of hydrogen environment assisted cracking. *Acta Mater* 2016;117:321–32.

- [8] Gerberich W. 8 – Modeling hydrogen induced damage mechanisms in metals. In: Gangloff RP, Somerday BP, editors. Gaseous hydrogen embrittlement of materials in energy technologies. Woodhead Publishing; 2012. p. 209–46.
- [9] Moriconi C, Hénaff G, Halm D. Cohesive zone modeling of fatigue crack propagation assisted by gaseous hydrogen in metals. *Int J Fatigue* 2014;68:56–66.
- [10] Sofronis P, McMeeking RM. Numerical analysis of hydrogen transport near a blunting crack tip. *J Mech Phys Solids* 1989;37:317–50.
- [11] Olden V, Saai A, Jemblie L, Johnsen R. FE simulation of hydrogen diffusion in duplex stainless steel. *Int J Hydrogen Energy* 2014;39:1156–63.
- [12] Dadfarnia M, Martin ML, Nagao A, Sofronis P, Robertson IM. Modeling hydrogen transport by dislocations. *J Mech Phys Solids* 2015;78:511–25.
- [13] Oriani RA. The diffusion and trapping of hydrogen in steel. *Acta Metall* 1970;18:147–57.
- [14] Kumnick AJ, Johnson HH. Deep trapping states for hydrogen in deformed iron. *Acta Metall* 1980;17:33–9.
- [15] Barrera O, Tarleton E, Tang HW, Cocks ACF. Modelling the coupling between hydrogen diffusion and the mechanical behavior of metals. *Comput Mater Sci* 2016;122:219–28.
- [16] Díaz A, Alegre JM, Cuesta II. Coupled hydrogen diffusion simulation using a heat transfer analogy. *Int J Mech Sci* 2016:360–9.
- [17] Turnbull A. Perspectives on hydrogen uptake, diffusion and trapping. *Int J Hydrogen Energy* 2015;40:16961–70.
- [18] Martínez-Pañeda E, del Busto S, Niordson CF, Betegón C. Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip. *Int J Hydrogen Energy* 2016;41:10265–74.
- [19] Dugdale DS. Yielding in steel sheets containing slits. *J Mech Phys Solids* 1960;8:100–4.
- [20] Barenblatt GI. The mathematical theory of equilibrium cracks in brittle fracture. *Advances in applied mechanics*, vol. VII. New York: Academic Press; 1962. p. 55–129.
- [21] Xu X-P, Needleman A. Void nucleation by inclusion debonding in a crystal matrix. *Modell Simul Mater Sci Eng* 1993;1:111–36.
- [22] Roe KL, Siegmund T. An irreversible cohesive zone model for interface fatigue crack growth simulation. *Eng Fract Mech* 2003;68:56–66.
- [23] Gao YF, Bower AF. A simple technique for avoiding convergence problems in finite element simulations of crack nucleation and growth on cohesive interfaces. *Modell Simul Mater Sci Eng* 2004;12:453–63.
- [24] Sánchez J, Ridruejo A, Muñoz E, Andrade C, Fullea J, de Andres P. Calculation of the crack propagation rate due to hydrogen embrittlement. *Hormigón y Acero* 2016;67:325–32.
- [25] Tvergaard V. Effect of thickness inhomogeneities in internally pressurized elastic-plastic spherical shells. *J Mech Phys Solids* 1976;24:291–304.
- [26] Segurado J, Llorca J. A new three-dimensional interface finite element to simulate fracture in composites. *Int J Solids Struct* 2004;41:2977–93.
- [27] Martínez-Pañeda E, Deshpande VS, Niordson CF, Fleck NA. Crack growth resistance in metals; 2017 [submitted for publication]
- [28] Papazafeiropoulos G, Muñoz-Calvente M, Martínez-Pañeda E. Abaqus2Matlab: a suitable tool for finite element post-processing. *Adv Eng Softw* 2017;105:9–16.
- [29] Gangloff RP. Corrosion fatigue crack propagation in metals. In: Gangloff RP, Ives MB, editors. Environment induced cracking of metals. NACE International; 1990. p. 55–109.
- [30] Di Leo CV, Anand L. Hydrogen in metals: a coupled theory for species diffusion and large elastic-plastic deformations. *Int J Plast* 2013;31:1037–42.
- [31] Tvergaard V, Hutchinson JW. The relation between crack growth resistance and fracture process parameters in elastic-plastic solids. *J Mech Phys Solids* 1992;40:1377–97.
- [32] Martínez-Pañeda E, Betegón C. Modeling damage and fracture within strain-gradient plasticity. *Int J Solids Struct* 2015;59:208–15.
- [33] Gangloff RP. A review and analysis of the threshold for hydrogen environment embrittlement of steel. In: Levy M, Isserow S, editors. Corrosion prevention and control: proceedings of the 33rd Sagamore Army materials research conference US Army Laboratory Command, Watertown, MA; 1986. p. 64–111.
- [34] Paris PC, Gomez MP, Anderson WP. A rational analytic theory of fatigue. *Trend Eng* 1961;13:9–14.
- [35] Murakami Y. 11 – Effects of hydrogen on fatigue-crack propagation in steels. In: Gangloff RP, Somerday BP, editors. Gaseous hydrogen embrittlement of materials in energy technologies. Woodhead Publishing; 2012. p. 379–419.
- [36] McMeeking RM. Finite deformation analysis of crack-tip opening in elastic-plastic materials and implications for fracture. *J Mech Phys Solids* 1977;25:357–81.
- [37] Tanaka H, Honma N, Matsuoka S, Murakami Y. Effect of hydrogen and frequency on fatigue behaviour of SCM435 steel for storage cylinder of hydrogen station. *Trans JSME A* 2007;73:1358–65.
- [38] Suresh S, Ritchie RO. Mechanistic dissimilarities between environmentally influenced fatigue-crack propagation at near-threshold and higher growth rates in lower strength steels. *Metal Sci* 1982;16:529–38.
- [39] Kawamoto K, Oda Y, Noguchi H. Fatigue crack growth characteristics and effects of testing frequency on fatigue crack growth rate in a hydrogen gas environment in a few alloys. *Mat Sci For* 2007:329–32.
- [40] Betegón C, Hancock JW. Two-parameter characterization of elasticplastic crack-tip fields. *J Appl Mech* 1991;58:104–10.
- [41] Martínez-Pañeda E, Niordson CF, Bardella L. A finite element framework for distortion gradient plasticity with applications to bending of thin foils. *Int J Solids Struct* 2016;96:288–99.
- [42] Martínez-Pañeda E, Niordson CF. On fracture in finite strain gradient plasticity. *Int J Plast* 2016;80:154–7.
- [43] Martínez-Pañeda E, Natarajan S, Bordas S. Gradient plasticity crack tip characterization by means of the extended finite element method. *Comput Mech* 2017;59:831–42.
- [44] Brinckmann S, Siegmund T. Computations of fatigue crack growth with strain gradient plasticity and an irreversible cohesive zone model. *Eng Fract Mech* 2008;75:2276–94.
- [45] Brinckmann S, Siegmund T. A cohesive zone model based on the micromechanics of dislocations. *Modell Simul Mater Sci Eng* 2008;065003:19.
- [46] Martínez-Pañeda E, Betegón C. A mechanism-based framework for hydrogen assisted cracking; 2017 [submitted for publication]

Paper B: *Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip*

E. Martínez-Pañeda, S. del Busto, C.F. Niordson, C. Betegón

*International Journal of Hydrogen Energy,
41: 10265-10274 (2016)*



ELSEVIER

Available online at www.sciencedirect.com

ScienceDirect

journal homepage: www.elsevier.com/locate/ijhydene

Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip

E. Martínez-Pañeda^{a,*}, S. del Busto^a, C.F. Niordson^b, C. Betegón^a

^a Department of Construction and Manufacturing Engineering, University of Oviedo, Gijón 33203, Spain

^b Department of Mechanical Engineering, Solid Mechanics, Technical University of Denmark, DK-2800 Kgs. Lyngby, Denmark

ARTICLE INFO

Article history:

Received 25 November 2015

Received in revised form

3 May 2016

Accepted 3 May 2016

Available online 27 May 2016

Keywords:

Strain gradient plasticity

Hydrogen embrittlement

Fracture mechanics

Hydrogen diffusion

Finite element analysis

ABSTRACT

In this work hydrogen diffusion towards the fracture process zone is examined accounting for local hardening due to geometrically necessary dislocations (GNDs) by means of strain gradient plasticity (SGP). Finite element computations are performed within the finite deformation theory to characterize the gradient-enhanced stress elevation and subsequent diffusion of hydrogen towards the crack tip. Results reveal that GNDs, absent in conventional plasticity predictions, play a fundamental role on hydrogen transport ahead of a crack. SGP estimations provide a good agreement with experimental measurements of crack tip deformation and high levels of lattice hydrogen concentration are predicted within microns to the crack tip. The important implications of the results in the understanding of hydrogen embrittlement mechanisms are thoroughly discussed.

© 2016 Hydrogen Energy Publications LLC. Published by Elsevier Ltd. All rights reserved.

Introduction

When exposed to hydrogen, high-strength alloys suffer from a loss of ductility and toughness leading to premature failure [1]. The atomistic mechanism for hydrogen embrittlement remains controversial with two major candidates being inferred from experiments: hydrogen enhanced decohesion (HEDE) and hydrogen enhanced localized plasticity (HELP). Models adopting the hypothesis that interstitial hydrogen lowers the cohesive strength are able to capture the experimental trends depicted by high-strength steels in aqueous solutions and hydrogen-containing gaseous environments (see [2]). Several attractive hydrogen-sensitive cohesive zone formulations have been proposed within this HEDE

framework (e.g., [3–6]); and accurate estimations of the threshold stress intensity K_{TH} and the stage II subcritical crack growth rate have been obtained by means of Gerberich's [7] dislocation-based model [8–10]. However, uncertain adjustable parameters are a shortcoming of the models and it is necessary to better define conditions within 0.1–5 μm of the crack tip, where dislocations, microstructure and chemistry dominate material behavior [11]. An accurate characterization of crack tip stresses appears fundamental as the hydrostatic stress dominates both lattice hydrogen concentration and interface decohesion.

The seminal paper by Sofronis and McMeeking [12] established the basis of hydrogen diffusion to the fracture process zone: lattice hydrogen concentration increases with distance from the crack tip, reaching its maximum at the peak site of

* Corresponding author. Tel.: +34 985 18 19 67; fax: +34 985 18 24 33.

E-mail address: mail@empaneda.com (E. Martínez-Pañeda).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.ijhydene.2016.05.014>

0360-3199/© 2016 Hydrogen Energy Publications LLC. Published by Elsevier Ltd. All rights reserved.

the hydrostatic stress. The aforementioned hydrogen distribution follows the trend depicted by crack tip stresses in finite strain J_2 plasticity and suggests that hydrogen trapped at microstructural sites plays a major role. However, classical continuum theories are unable to adequately characterize behavior at the small scales involved in crack tip deformation. Particularly, accounting for the influence of geometrically necessary dislocations (GNDs) appears imperative, as the plastic zone adjacent to the crack tip is physically small and contains strong spatial gradients of deformation.

As a consequence of increasing interest in microtechnology, the role of GNDs, associated with non-uniform plastic deformation, has been thoroughly investigated in a wide range of metallic materials. Thus, micro-test experiments such as bending [13], torsion [14] or nano-indentation [15] have shown that metals display a strong size effect, with smaller being stronger, when non-uniform plastic deformation is confined within a small volume. In parallel, a large theoretical (see, e.g., [16–19]) and numerical (see, e.g., [20–24]) literature has appeared seeking to model the experimentally observed increase in yield strength and material hardening with diminishing size. In order to do so, several continuum strain gradient plasticity (SGP) theories have been developed through the years to incorporate length scale parameters in the constitutive equations. Gradient theories have been employed to provide a refined characterization of the stress distribution ahead of a crack and several authors have shown that GNDs close to the crack tip promote local strain hardening, leading to a much higher stress level as compared with classical plasticity predictions [25–27]. Moreover, Martínez-Pañeda and co-workers [28,29] have extended these studies to the finite deformation framework, revealing a significant increase of the GND-dominated zone, as crack tip blunting is severely reduced due to the contribution of strain gradients to the work hardening of the material. Their results show that SGP predictions deviate from conventional plasticity in a physical length that spans tens of μm , highlighting the need to account for GNDs in the modelization of many damage mechanisms. As an example, traction levels estimated by SGP have been employed to justify the experimental observation of cleavage fracture in the presence of significant plastic flow [30,31].

Although several authors (see, e.g., [8,32,33]) have noted that GNDs may be of critical relevance in hydrogen assisted cracking, its influence in hydrogen transport has not been assessed. In the present work, crack tip hydrogen diffusion is examined within a large strain framework by means of strain gradient plasticity. Several cases of particular interest are addressed with the aim of gaining insight into the role of dislocations in the continuum modeling of hydrogen diffusion. Results obtained are compared to available experimental data and physical implications are thoroughly discussed.

Numerical framework

Hydrogen diffusion to the crack tip is evaluated by means of a stress-diffusion finite element framework. A decoupled scheme is developed where a stress analysis is first conducted

so as to compute the hydrostatic stress σ_H at a certain load level. The nodal averaged value of σ_H is then provided as initial condition in a subsequent diffusion study. The following sections respectively describe the finite strain SGP formulation employed in the stress computations and the diffusion analysis.

Strain gradient plasticity

The strain gradient generalization of J_2 flow theory proposed by Fleck and Hutchinson [18] is adopted to phenomenologically account for geometrically necessary dislocations in the continuum modeling. Hardening effects due to plastic strain gradients are included through the gradient of the plastic strain rate $\dot{\epsilon}_{ij,k}^p = (m_{ij}\dot{\epsilon}^p)_{,k}$. Where $\dot{\epsilon}^p = \sqrt{\frac{2}{3}\dot{\epsilon}_{ij}^p\dot{\epsilon}_{ij}^p}$ is the increment in the conventional measure of the effective plastic strain and $m_{ij} = \frac{3}{2}s_{ij}/\sigma_e$ is the direction of the plastic strain increment, with s_{ij} denoting the stress deviator, and σ_e the von Mises effective stress. The third order plastic strain gradient tensor $\dot{\epsilon}_{ij,k}^p$ can be decomposed, via orthogonal decomposition, into three independent tensors $\dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(N)}$, with $N = 1, 3$ [34]. Such that a gradient-enhanced effective plastic strain rate, \dot{E}^p can be defined in terms of three unique, non-negative invariants of $\dot{\epsilon}_{ij,k}^p$, which are homogeneous of degree two:

$$\dot{E}^p = \sqrt{\dot{\epsilon}_p^2 + l_1^2 \dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(1)} \dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(1)} + 4l_2^2 \dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(2)} \dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(2)} + \frac{8}{3}l_3^2 \dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(3)} \dot{\epsilon}_{ij,k}^{p(3)}} \quad (1)$$

where, l_1 , l_2 and l_3 are material length parameters. The effective plastic strain rate can be expressed explicitly in terms of $\dot{\epsilon}^p$ and $\dot{\epsilon}_{,i}^p$ by making use of the coefficients A_{ij} , B_i and C [18]:

$$\dot{E}^p = \sqrt{\dot{\epsilon}_p^2 + A_{ij}\dot{\epsilon}_{,i}^p\dot{\epsilon}_{,j}^p + B_i\dot{\epsilon}_{,i}^p\dot{\epsilon}^p + C\dot{\epsilon}^{p^2}} \quad (2)$$

For a body of volume V and surface S , the principle of virtual work in the current configuration is given by

$$\int_V (\sigma_{ij}\delta\dot{\epsilon}_{ij} - (Q - \sigma_e)\delta\dot{\epsilon}^p + \tau_i\delta\dot{\epsilon}_{,i}^p) dV = \int_S (T_i\delta\dot{u}_i + t\delta\dot{\epsilon}^p) dS \quad (3)$$

Here, \dot{u}_i is the displacement rate, $\dot{\epsilon}_{ij}$ is the total strain rate, σ_{ij} is the symmetric Cauchy stress tensor, Q is a generalized effective stress (work conjugate to the conventional effective plastic strain) and τ_i is the higher order stress (work conjugate to the plastic strain gradient). The surface integral contains traction contributions from the conventional surface traction $T_i = \sigma_{ij}n_j$ and the higher order traction $t = \tau_i n_i$.

A finite strain version of the gradient theory by Fleck and Hutchinson [18] is implemented following the work of Niordson and Redanz [35]; where a thorough description can be found (see also [36]). An updated Lagrangian configuration is adopted and by means of Kirchhoff stress measures the incremental principle of virtual work, Eq. (3), can be expressed as:

$$\begin{aligned} & \int_V (\nabla_{ij}\delta\dot{\epsilon}_{ij} - \sigma_{ij}(2\dot{\epsilon}_{ik}\delta\dot{\epsilon}_{kj} - \dot{\epsilon}_{kj}\delta\dot{\epsilon}_{ki}) + (\dot{q} - \dot{\sigma}_e^c)\delta\dot{\epsilon}^p + \dot{\tau}_i\delta\dot{\epsilon}_{,i}^p) dV \\ & = \int_S (\dot{T}_{0i}\delta\dot{u}_i + \dot{t}_0\delta\dot{\epsilon}^p) dS \end{aligned} \quad (4)$$

Here, ∇_{ij} is the Jaumann rate of the conventional Kirchhoff stress, \dot{q} is the rate of the Kirchhoff variant of the effective

stress, $\dot{\rho}_i$ is the convected derivative of the higher order Kirchhoff stress and the velocity gradient is denoted by $\dot{\epsilon}_{ij}$. The Kirchhoff quantities are related to their Cauchy counterparts in Eq. (3) by the determinant, J , of the deformation gradient: $\varsigma_{ij} = J\sigma_{ij}$, $\rho_i = J\tau_i$, $q = JQ$ and $\sigma_e^p = J\sigma_e$. The incremental constitutive equations for the stress measures are given, in terms of the hardening modulus $h[E_p]$, by:

$$\dot{\varsigma}_{ij} = \mathcal{D}_{ijkl}(\dot{\epsilon}_{kl} - \dot{\epsilon}^p m_{kl}) = \dot{\varsigma}_{ij} - \dot{\omega}_{ik}\sigma_{kj} - \sigma_{ik}\dot{\omega}_{jk} \quad (5)$$

$$\dot{q} - \dot{\sigma}_{(e)}^p = h\left(\dot{\epsilon}^p + \frac{1}{2}B_i\dot{\epsilon}_i^p + C\dot{\epsilon}^p\right) - m_{ij}\dot{\varsigma}_{ij} \quad (6)$$

$$\dot{\rho}_i = h\left(A_{ij}\dot{\epsilon}_j^p + \frac{1}{2}B_i\dot{\epsilon}^p\right) = \dot{\rho}_i - \dot{\epsilon}_{ik}\rho_k \quad (7)$$

where, for a given Young's modulus E and Poisson ratio ν , the elastic stiffness tensor equals

$$\mathcal{D}_{ijkl} = \frac{E}{1+\nu}\left(\frac{1}{2}(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) + \frac{\nu}{1-2\nu}\delta_{ij}\delta_{kl}\right) \quad (8)$$

and $\dot{\omega}_{ij} = \frac{1}{2}(\dot{\epsilon}_{ij} - \dot{\epsilon}_{ji})$ is the anti-symmetric part of the velocity gradient.

A special kind of finite element (FE) method is used where, in addition to the nodal displacement increments, D^n , the nodal effective plastic strain increments, $\dot{\epsilon}_n^p$, appear directly as unknowns. The displacement increments, \dot{u}_i , and the effective plastic strain increments, $\dot{\epsilon}^p$, are interpolated within each plane strain element by means of the shape functions N_i^n and M^n :

$$\dot{u}_i = \sum_{n=1}^{2k} N_i^n D^n, \quad \dot{\epsilon}^p = \sum_{n=1}^l M^n \dot{\epsilon}_n^p \quad (9)$$

where k and l are the number of nodes used for the displacement and the effective plastic strain interpolations, respectively. Quadratic shape functions are used for the displacement field ($k = 8$) while linear shape functions are employed for the effective plastic strain field ($l = 4$). By introducing the FE interpolation of the displacement field and the effective plastic strain field (9), and their appropriate derivatives, in the principle of virtual work (4), the following discretized system of equations is obtained:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{K}_e & \mathbf{K}_{ep} \\ \mathbf{K}_{ep}^T & \mathbf{K}_p \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \dot{D} \\ \dot{\epsilon}^p \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \dot{F}_1 \\ \dot{F}_2 \end{bmatrix} \quad (10)$$

Here, \mathbf{K}_e is the elastic stiffness matrix, \mathbf{K}_{ep} is a coupling matrix of dimension force and \mathbf{K}_p is the plastic resistance, a matrix of dimension energy. The first part of the right-hand side of Eq. (10) is composed of the conventional external incremental force vector \dot{F}_1 and the incremental higher order force vector \dot{F}_2 . The contribution of \mathbf{K}_p is minimized in the elastic regime, non-restricting the plastic strain at the evolving elastic–plastic boundary as within conventional plasticity (see [20]).

Based on a forward Euler scheme, when nodal displacement and effective plastic strain increments have been determined, the updated strains, ϵ_{ij} , stresses, σ_{ij} , higher order stresses, τ_i , and Q are computed at each integration point.

Hydrogen diffusion

The diffusion problem, in a volume V of surface S and outward normal n_i , is derived from the requirement of mass conservation for the diffusing phase: (see, e.g., [12]).

$$\frac{d}{dt} \int_V c \, dV + \int_S n_i J_i \, dS = 0 \quad (11)$$

where d/dt is the time derivative, c is the mass concentration of the diffusing material and J_i is the flux of concentration of the diffusing phase. A normalized concentration is defined $\phi = c/s$ denoting the relation between the mass concentration of the diffusing material c and its solubility in the base material s . Within this framework, stress-driven hydrogen diffusion to the crack tip is modeled by an extended form of Fick's law:

$$J_i = -sD\nabla(\phi - \kappa_p\sigma_H) \quad (12)$$

With D being the hydrogen diffusion coefficient and κ_p the pressure stress factor, which is defined by

$$\kappa_p = \frac{V_H\phi}{R(T - T^z)} \quad (13)$$

Here, V_H is the partial molar volume of hydrogen, T is the temperature (with $T^z = 0$ K being its absolute zero value) and R is the universal gas constant. Time integration in the transient diffusion computations conducted is performed by means of the backward Euler method. Under steady-state conditions, the normalized concentration ϕ is related to the hydrostatic stress σ_H by:

$$\phi = \phi_0 \exp\left(\frac{V_H\sigma_H}{R(T - T^z)}\right) \quad (14)$$

With ϕ_0 being the normalized hydrogen concentration in the unstressed state.

Finite element results

The role of strain gradients in hydrogen diffusion is assessed by addressing several cases of particular interest. Firstly, following the pioneering work by Sofronis and McMeeking [12], hydrogen transport towards a blunted crack tip in an iron-based material is addressed. Afterwards, inspired by the work by Olden et al. [37], crack tip blunting and transient hydrogen diffusion on duplex stainless steel is examined. And lastly, the distribution of hydrogen ahead of a crack in X80 pipeline steel is modeled and compared to the experimental results of Mao and Li [38].

Hydrogen transport in impure iron

In their pioneering work, Sofronis and McMeeking [12] established the basis for hydrogen transport ahead of the crack under large strains. The influence of GNDs is first examined by mimicking their conventional plasticity calculations. Crack tip fields are evaluated in the stress analysis by means of a boundary layer formulation. Hence, as described in Fig. 1, the

crack region is contained by a circular zone and a remote Mode I load is applied by prescribing the displacements of the nodes at the remote circular boundary:

$$u(r, \theta) = K_I \frac{1+\nu}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) (3 - 4\nu - \cos\theta) \quad (15)$$

$$v(r, \theta) = K_I \frac{1+\nu}{E} \sqrt{\frac{r}{2\pi}} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) (3 - 4\nu - \cos\theta) \quad (16)$$

Here, u and v are the horizontal and vertical components of the displacement boundary condition, r and θ the radial and angular coordinates of each boundary node in a polar coordinate system centered at the crack tip, and K_I is the applied stress intensity factor, which quantifies the remote load. Following [12,39], a ratio between the radii of the outer boundary and the blunted crack tip of $R/r_0 = 10^5$ is adopted (with $r_0 = 0.0005$ mm). Plane strain and small scale yielding conditions are assumed and only the upper half of the circular domain is modeled due to symmetry. After a thorough sensitivity study, a mesh of 6200 eight-noded quadrilateral elements with reduced integration is employed in both the diffusion and the stress analyses (see Fig. 2).

Regarding the diffusion model, an initial bulk concentration c_0 may be defined to avoid numerical oscillations (see Ref. [12]). The boundary concentration is prescribed in the crack flank as a function of the initial concentration and the hydrostatic stress (see Eq. (14) and Fig. 1). The boundary conditions adopted accurately capture the diffusion of hydrogen to the fracture process zone under both internal and environmental assisted hydrogen cracking. Other combinations of hydrogen flux boundary conditions have been considered but, as already noted by Sofronis and McMeeking [12], the sensitivity of the hydrogen distribution ahead of the crack tip is negligible. The boundary conditions employed significantly alleviate convergence problems derived from the existing steep concentration gradients and follow the concept of prescribing a constant lattice chemical potential rather than a constant lattice hydrogen concentration, as introduced by Di Leo and Anand [40]. Unlike the gradient-enhanced stress computations, the diffusion study can be easily performed in commercial FE packages as it does not require a special FE formulation. In the case of the well-known FE code ABAQUS,

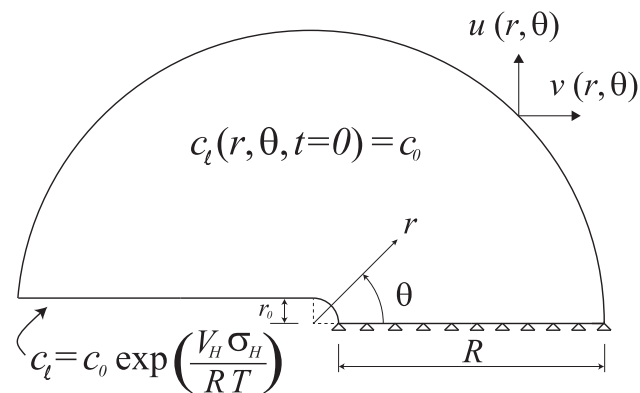


Fig. 1 – Description of the boundary and initial conditions for the stress and diffusion model employed for the impure iron case.

the outcome of the stress analysis (averaged nodal values of σ_H) can be read from a file and subsequently introduced as input in the diffusion study by means of a UPRESS subroutine. A constant lattice chemical potential can be prescribed by reading the same file within a DISP subroutine.

Results are obtained for impure iron, with its uniaxial stress-strain law being characterized by (see [12]),

$$\left(\frac{\sigma}{\sigma_Y}\right)^{1/N} = \frac{\sigma}{\sigma_Y} + \frac{3\mu}{\sigma_Y} \epsilon^p \quad (17)$$

Where the strain hardening exponent, the yield stress and the shear modulus are given by $N = 0.2$, $\sigma_Y = 250$ MPa and $\mu = 79.6$ GPa ($E = 207$ GPa and $\nu = 0.3$), respectively. A material length scale of $l_1 = l_2 = l_3 = 5$ μm is adopted in the gradient-enhanced computations. This would be a typical estimate for nickel (see [13]) and corresponds to an intermediate value within the range of experimentally fitted length scales reported in the literature. The hydrostatic stress distribution obtained for an external load of $K_I = 89.7$ $\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ is shown in Fig. 3. The stress values are normalized by σ_Y while the distance to the crack tip r is left unchanged, with the aim of assessing the physical length where strain gradients are particularly relevant. As SGP theories describe the collective behavior of a significant number of dislocations, they are only applicable at a scale much larger than the average dislocation spacing. For common values of dislocation density in metals, a lower limit of physical validity could be established around 100 nm and consequently results are generally shown beyond the aforementioned distance to the crack tip. The abscissa axis is plotted in logarithmic scale for the sake of clarity, but results in a regular linear scale are also shown in the inset of the figure.

Classical plasticity predictions reproduce the well known behavior revealed by McMeeking [39]: σ_H increases for decreasing values of r until the stresses become influenced by crack blunting. As large strains cause the crack to blunt, the stress triaxiality is reduced locally, with σ_H reaching a peak at – in the present case study – $r \approx 6$ μm . However, a monotonic increase of the stress level is observed when the influence of strain gradients is accounted for. SGP predictions agree with J2 plasticity far from the crack tip but significant differences arise in the vicinity of the crack, as the density of GNDs increases. Gradient plasticity estimations of σ_H are based on the trend depicted by the opening ($\sigma_{\theta\theta}$) and axial stresses (σ_{rr}), as shown in Fig. 4. $\sigma_{\theta\theta}$ increases monotonically as the distance to the crack tip decreases while σ_{rr} vanishes at the free surface.

Local stress reduction does not take place in SGP due to the contribution of strain gradients to the work hardening of the material [28,29]. The influence on hydrogen diffusion of the macroscopic stress elevation attained due to gradient-enhanced hardening is subsequently examined.

Fig. 5 shows the results obtained in the subsequent diffusion study of hydrogen transport in impure iron. Following [12], the lattice diffusion constant is given by $D = 1.27 \cdot 10^{-8}$ m^2s^{-1} and the initial concentration of hydrogen in the bulk is $c_0 = 2.084 \cdot 10^{21}$ atoms per m^3 . As in [12,40], the distribution of lattice hydrogen concentration c_l ahead of the crack tip is computed after 1419 h.

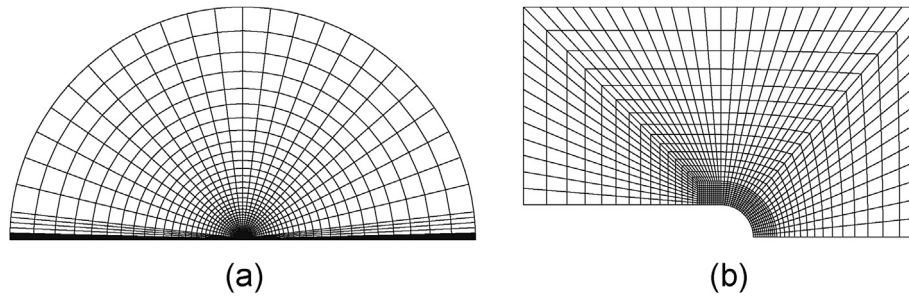


Fig. 2 – Finite element mesh: (a) complete model and (b) vicinity of the crack.

As discussed in [40], after 500 h the change in concentration rate is negligible, such that $t = 1419$ h is well beyond the time at which steady-state conditions are first reached. By prescribing a constant lattice chemical potential – as opposed to a constant lattice hydrogen concentration – numerical predictions are able to match the steady-state profile predicted by Eq. (14).

As in [40], the distribution of lattice hydrogen estimated by means of conventional plasticity reaches a peak at $c_i/c_0 \approx 2.7$ and then decreases as the crack tip is approached. On the contrary, in accordance with the trend depicted by σ_H , when strain gradients are accounted for the hydrogen concentration increases monotonically as r decreases. Consequently, significant differences arise between the predictions of conventional and gradient-enhanced plasticity formulations, with the latter estimating high levels of lattice hydrogen close to the crack surface. Results reveal that GNDs, absent in conventional plasticity predictions, play a very relevant role in hydrogen diffusion ahead of a crack tip.

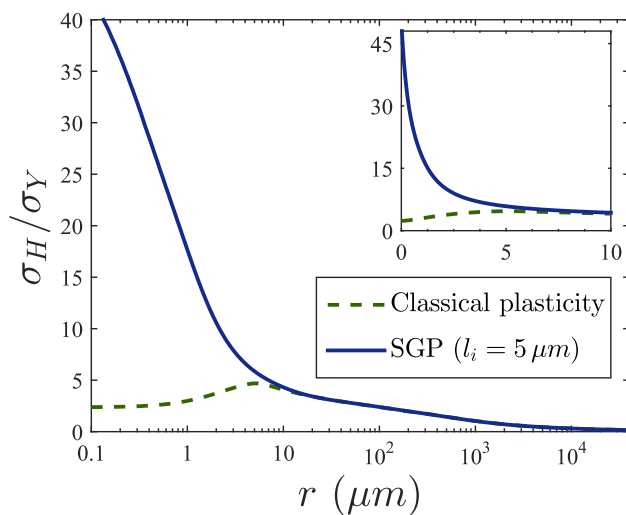


Fig. 3 – Normalized hydrostatic stress distribution ahead of the crack tip in impure iron for an external load of $K_I = 89.7 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ from SGP (with $l_i = 5 \mu\text{m}$) and classical plasticity. The figure shows results along the extended crack plane with the distance to the crack tip in linear (inset) and logarithmic (main figure) scales.

Crack tip blunting and hydrogen distribution in duplex stainless steel

Despite its wide use in sub-sea applications, duplex stainless steels are sensitive to environmentally assisted hydrogen cracking at low corrosion protection potentials [41]. The role of plastic strain gradients on the onset of damage in 25%Cr duplex stainless steel is assessed by estimating the distribution of lattice hydrogen in the experiments carried out by Olden et al. [37]. Hence, single edge notched tensile (SENT) specimens under constant load and cathodic protection are examined. Due to symmetry, only half of the SENT specimen is modeled, as depicted in Fig. 6a. A mesh of approximately 4000 quadratic quadrilateral plane strain elements is employed, with an element size of a few nanometers in the vicinity of the 2 mm fatigued pre-crack. The material behavior is characterized by fitting the stress-strain tensile test data shown in Fig. 6b, and the load is applied by imposing an applied stress σ_a in the right edge of the specimen.

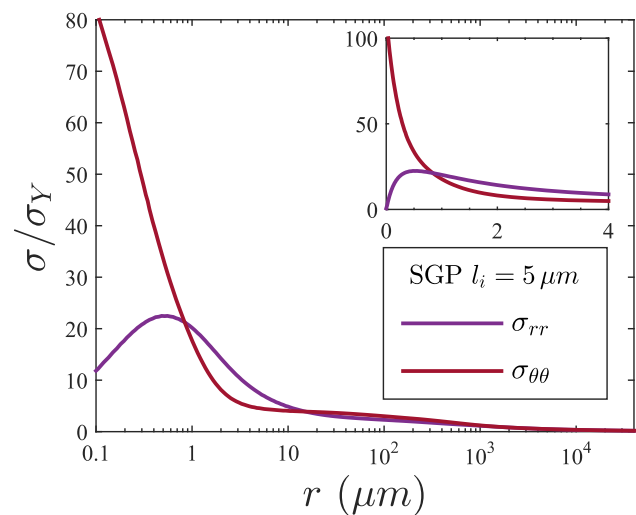


Fig. 4 – Normalized opening ($\sigma_{\theta\theta}$) and axial (σ_{rr}) stress distributions ahead of the crack tip in impure iron for an external load of $K_I = 89.7 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ from SGP (with $l_i = 5 \mu\text{m}$). The figure shows results along the extended crack plane with the distance to the crack tip in linear (inset) and logarithmic (main figure) scales.

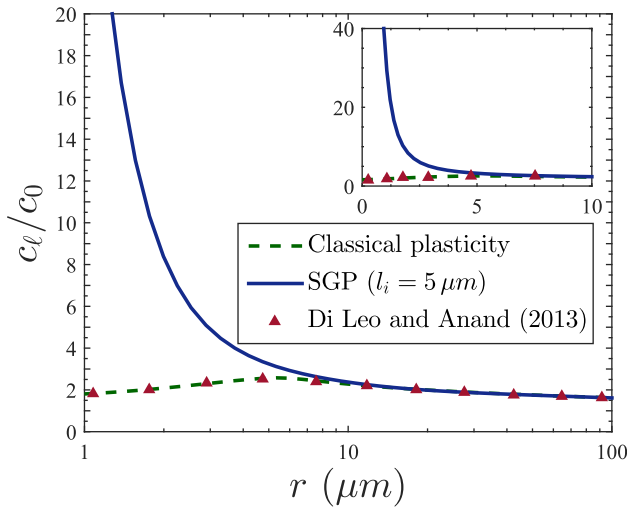


Fig. 5 – Normalized concentration of lattice hydrogen ahead of the crack tip in impure iron for SGP (with $l_i = 5 \mu\text{m}$) and classical plasticity. The figure shows results along the extended crack plane after 1419 h, with the distance to the crack tip in linear (inset) and logarithmic (main figure) scales.

The stress analysis leads to the qualitative output depicted in the previous case study: a monotonic increase of the hydrostatic stress is observed when strain gradients are accounted for. As outlined before, the stress triaxiality reduction near the crack tip intrinsic to classical plasticity is not observed in SGP theories due to the contribution of the strain gradients to the work hardening of the material. Namely, enhanced dislocation hardening significantly lowers crack tip blunting with respect to conventional plasticity predictions (see [29]). Fig. 7 shows the crack mouth opening displacement (CMOD, measured at point A in Fig. 6a) computed for several load levels from both classical plasticity and SGP. Computations are performed for three values of the intrinsic material length l_i with the aim of assessing the role of the parameter(s) governing the influence of the GNDs density. The experimentally measured data of [37] is also included.

As shown in Fig. 7, crack blunting is significantly reduced when GNDs are accounted for, with the differences with

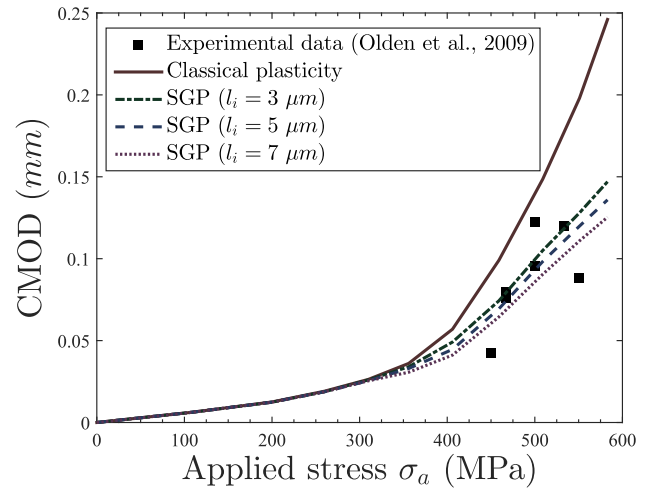


Fig. 7 – Experimental and numerical predictions for the crack mouth opening displacement in duplex stainless steel.

classical plasticity increasing with the load. Results also show little influence of the material length scale l_i , despite varying its value over the range of experimentally reported values. Moreover, SGP predictions seem to provide a better fit with the experiments of [37].

For the subsequent diffusion study two different load levels have been considered, which correspond to net section stresses of 480 and 600 MPa or, equivalently, 80–100% of the material yield strength (typical service stress levels for sub-sea pipelines are in the range of 60–80% of the yield stress). Following [37]; a surface hydrogen concentration of 1 ppm is assumed, which corresponds to the conditions of the experimental setup (3% NaCl solution, artificial sea water at 4° C and an applied cathodic potential of $-1050 \text{ mV}_{\text{SCE}}$). A transient study is conducted with the aim of assessing crack tip hydrogen concentration after 200 h of exposure. The diffusion coefficient is estimated to be $3.7 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ (see [37]). Boundary conditions are depicted in Fig. 6a with a constant lattice hydrogen concentration being prescribed, unlike the previous case study. Since GNDs lead to steep concentration gradients and a surface hydrogen concentration is imposed at the crack flanks, numerical convergence (with a negligible effect in the

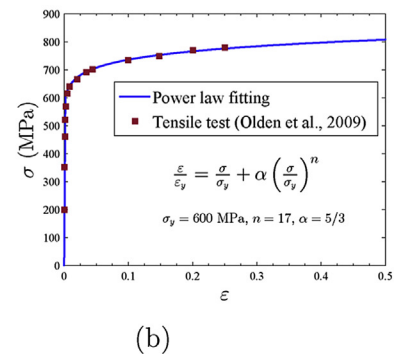
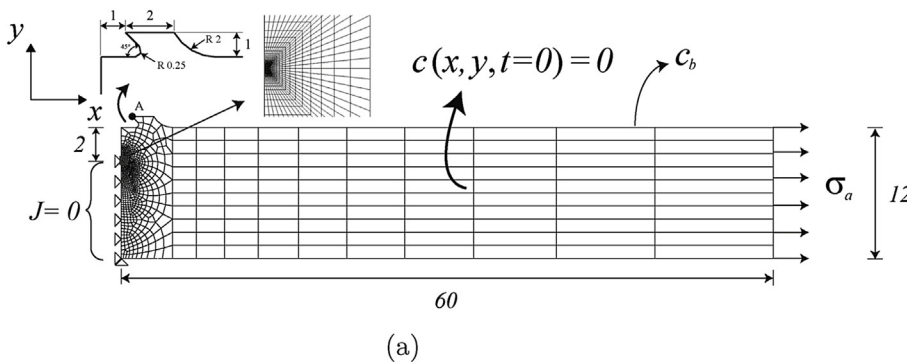


Fig. 6 – Finite element model for the duplex stainless steel study: (a) Mesh, geometry and boundary conditions, with all dimensions in mm and (b) Stress-strain curve.

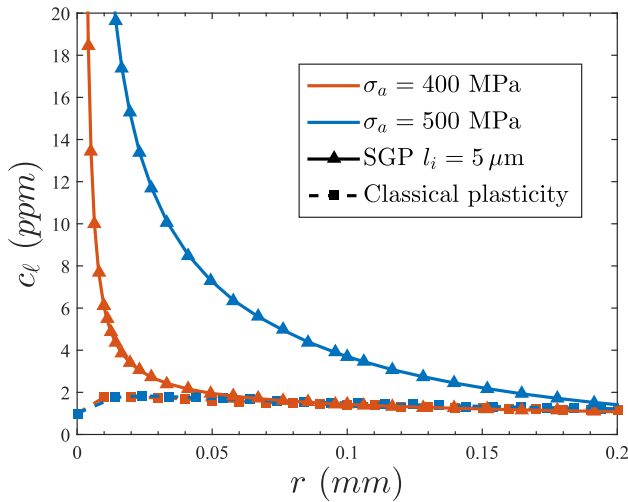


Fig. 8 – Concentration of lattice hydrogen ahead of the crack tip in duplex stainless steel for SGP (with $l_i = 5 \mu\text{m}$) and classical plasticity. The figure shows results along the extended crack plane for different applied stresses σ_a after 200 h.

results for $r > 0.1 \mu\text{m}$) can be significantly improved by isolating (i.e., $J = 0$) the node at the crack tip. Results are shown in Fig. 8, where the SGP estimations have been computed for the intermediate value of the material length parameter ($l_i = 5 \mu\text{m}$).

Results reveal a major influence of GNDs over physically meaningful distances, with the lattice hydrogen concentration predicted by means of SGP significantly increasing within 0.05–0.1 mm to the crack tip. Classical plasticity predictions, in agreement with the computations of Olden et al. [37]; show little sensitivity to the external load. This is not the case if strain gradients are accounted for, as the lattice hydrogen level increases with the applied stress.

Crack tip hydrogen concentration in X80 pipeline steel

There is a strong consensus that large gradients of plastic strain close to the crack tip promote additional hardening and very high crack tip stresses that classical plasticity is unable to capture. This must undoubtedly lead to a high concentration of lattice hydrogen close to the crack surface. However, an experimental quantitative assessment is complicated as differences are located within a physical length on the order of micrometers. Secondary ion mass spectrometry (SIMS) seems to be one of the few techniques able to accurately measure hydrogen concentration profiles at such scales. By means of SIMS, Mao and Li [38], were able to measure the hydrogen distribution around a crack tip in X80 pipeline steel. In their experimental work, compact tension specimens were first loaded in the absence of hydrogen and then immersed in NS-4 solution at free potential for 72 h (typical test solution for coating disbondment in Canadian pipelines, more details can be found in [38]). Their experimental setup is modeled with the aim of gaining quantitative insight into the role of GNDs in crack tip hydrogen diffusion. As in the first case study, the

remote mode I load is imposed by means of a boundary layer formulation with three load levels being considered (see [38]): $K_I = 84 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ($J = 32 \cdot 10^3 \text{ J/m}^2$), $K_I = 150 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ($J = 102 \cdot 10^3 \text{ J/m}^2$) and $K_I = 173 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ($J = 136 \cdot 10^3 \text{ J/m}^2$). The elastic parameters of X80 steel are $E = 200 \text{ GPa}$ and $\nu = 0.3$. A yield stress of $\sigma_Y = 600 \text{ MPa}$ is adopted and following [38] a hardening law of the type

$$\frac{\varepsilon}{\varepsilon_Y} = \frac{\sigma}{\sigma_Y} + \alpha \left(\frac{\sigma}{\sigma_Y} \right)^n \quad (18)$$

is assumed, with ε_Y being the yield strain (σ_Y/E). The dimensionless constant α and the strain hardening exponent n respectively adopt the values of 0.01 and 6.6, respectively. A value of $l_i = 3 \mu\text{m}$ is adopted within the SGP formulation. The choice is based on the good agreement observed with the CMOD measurements in 25%Cr duplex stainless steel for $l_i = 5 \mu\text{m}$ and the fact that a higher degree of work hardening may be associated with a lower value of l_i (see, e.g., the expression for l provided by MSG plasticity, [28,31]). Fig. 9 shows the hydrostatic stress distribution computed ahead of the crack tip for both classical and strain gradient plasticity formulations.

Results show that significantly higher stress levels are attained with the SGP formulation. The differences with respect to classical plasticity predictions are relevant in a domain that spans several tens of μm , embracing the critical distance of many damage mechanisms. Fig. 9 also shows a distinct feature of conventional plasticity: the value of the peak stress remains constant as the applied load increases, while its location moves away from the crack tip. This peculiarity of large strain J_2 plasticity – on which many damage models are based – is not observed when GNDs are constitutively involved. On the contrary, the degree of stress elevation attained by means of SGP increases with the external load. Thereby, results reveal great differences between gradient and classical plasticity as the load increases, with σ_H

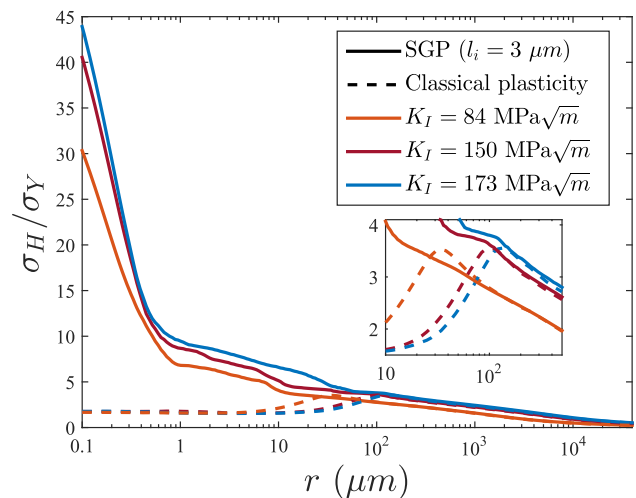


Fig. 9 – Normalized hydrostatic stress distribution ahead of the crack tip in X80 pipeline steel for SGP (with $l_i = 5 \mu\text{m}$) and classical plasticity. The figure shows results ahead of the crack tip for different load levels with the distance to the crack tip in log scale.

in the former being more than 20 times the conventional prediction.

A subsequent diffusion study is conducted where, mimicking the experimental setup, a bulk initial concentration of $c_i(t=0) = 0$ is defined and a boundary concentration of $c_i = c_0$ is imposed on crack flanks and outer radius. Convergence issues due to steep gradients can be alleviated by isolating a few nodes close to the crack tip, as in the previous case study. A lattice diffusion constant of $D = 6.699 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ is adopted, following the experimental measurements by Huang et al. [42]. The numerical results obtained after 72 h for both classical and gradient-enhanced formulations are shown in Fig. 10. The experimental SIMS measurements performed by Mao and Li [38] are also included.

Fig. 10 reveals important differences between conventional and gradient-enhanced predictions, with very high values of lattice hydrogen being predicted in the vicinity of the crack if certain microstructural features (GNDs) are incorporated into the modeling. The same trends are observed for the experimental measurements of diffusible hydrogen c and SGP-based predictions of c_i ; namely, hydrogen concentration (i) increases with the external load and (ii) raises sharply within microns to the crack tip as $r \rightarrow 0$.

The role of hydrogen trapping

Comprehensive modeling of hydrogen transport to the fracture process zone undoubtedly requires hydrogen trapping assessment. Of particular interest for the present study is the role played by hydrogen reversibly trapped at dislocations. Thus, the dislocation density ρ is composed of the sum of the density ρ_S for statistically stored dislocations (SSDs) and the density ρ_G for geometrically necessary dislocations (GNDs), which are respectively associated with the macroscopic concepts of plastic strain ε_p and plastic strain gradient $\varepsilon_{p,i}$. The modeling of lattice hydrogen diffusion in an iron-based material (Fig. 5), duplex stainless steel (Fig. 8) and X-80 steel (Fig. 10)

reveals significant quantitative and qualitative differences between conventional plasticity and SGP based predictions. As GNDs do not contribute to plastic strains but to material work hardening by acting as obstacles to the motion of SSDs, incorporating their influence into the modeling leads to high levels of c_i in the vicinity of the crack, where a large density of GNDs is attained to accommodate lattice curvature due to non-uniform plastic deformation. SGP predictions suggest that a critical combination of hydrogen concentration and stress will be attained very close to the crack tip, favoring hydrogen-enhanced decohesion. From a HEDE-based perspective, Olden et al. [37] accurately predicted crack initiation by lowering the cohesive resistance as a function of the total hydrogen concentration c . A linear relation between ε_p and hydrogen trapped in microstructural defects was assumed in their study, leading to crack tip levels of reversibly-trapped hydrogen concentration c_t one order of magnitude higher than c_i . Accordingly, damage nucleation (represented by collapse of the first cohesive element) occurred at the crack tip surface and not at the local stress peak (given by the conventional σ_H distribution). Experimental measurements of high levels of surface hydrogen and critical distances of the order of micro-meters are understood, within a conventional plasticity setting, to be due to very high levels of reversibly-trapped hydrogen in the vicinity of the crack (a thorough analysis can be found in [43]). However, SGP-based estimations imply that the weight of c_i within the total hydrogen concentration close to the crack tip could be much larger than previously anticipated and may provide some physical background to recent experimental and theoretical studies [44] that estimate a predominant role of lattice hydrogen in failure strength degradation. Fig. 10 reveals little differences between the total diffusible and the lattice hydrogen concentrations, suggesting a lesser role of reversible trapped hydrogen.

Physically-consistent relations between: (i) the plastic strain gradients and ρ_G , (ii) the plastic strains and ρ_S , and (iii) the total dislocation density and c_t , need to be established to model the kinetics of dislocation trapping accounting for both

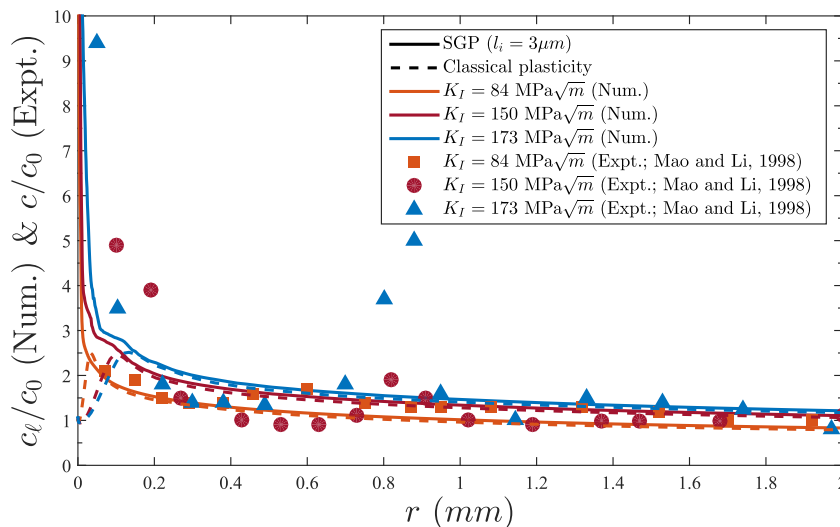


Fig. 10 – Experimental measurements and numerical predictions of, respectively, the diffusible and lattice hydrogen concentrations ahead of the crack tip in X80 pipeline steel after 72 h. The figure shows results along the extended crack plane for different load levels.

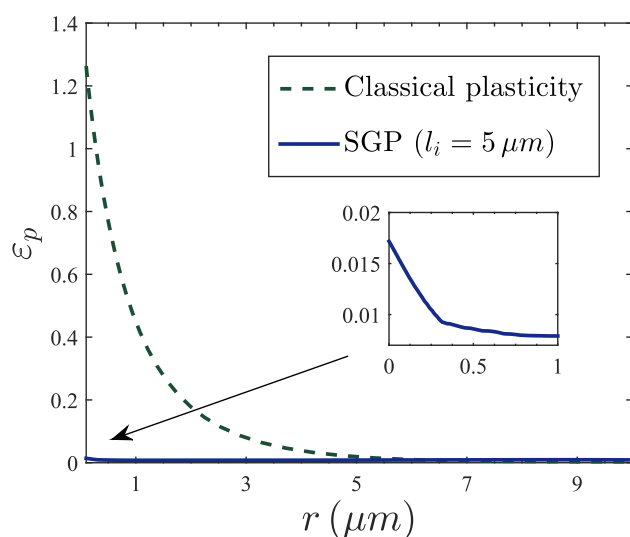


Fig. 11 – Equivalent plastic strain distribution ahead of the crack tip in an iron-based material for an external load of $K_I = 89.7 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ from SGP (with $l_i = 5 \mu\text{m}$) and classical plasticity. Material properties are $E = 207 \text{ GPa}$, $\nu = 0.3$, $\sigma_Y = 250 \text{ MPa}$ and $N = 0.2$.

GNDs and SSDs. Large strain gradients of plastic strain close to the crack tip lead to additional hardening and lower values of ε_p relative to conventional predictions. Fig. 11 shows the effective plastic strain distribution predicted by classical and gradient-enhanced plasticity models for an iron-based material under the same conditions as Fig. 3.

In consistency with the trends depicted by σ_H (see Fig. 3), results reveal a very strong influence of GNDs within microns to the crack. This necessarily implies that gradient effects lead to a much lower SSDs density with respect to conventional plasticity predictions. However, the same argument cannot be used for c_i , as shown in Refs. [23,24,31], SGP models predict large values of ρ in the vicinity of the crack, as ρ_G largely dominates the total dislocation density. Therefore, further research and critical experiments are need to quantitatively elucidate the role of GNDs in hydrogen trapping and other embrittlement mechanisms.

Conclusions

The role of geometrically necessary dislocations (GNDs) on crack tip hydrogen diffusion has been thoroughly investigated by means of strain gradient plasticity (SGP). The hydrostatic stress elevation and subsequent increase of hydrogen transport towards the crack tip associated with large gradients of plastic strain is examined in several metallic materials and differences with conventional plasticity quantified.

Results reveal a profound influence of the microstructure in several cases of particular interest from the engineering perspective. Particularly, the following key points must be highlighted:

- GNDs near the crack tip promote local hardening and lead to very high stresses over meaningful physical distances.

The differences with classical plasticity are further enhanced in a finite strains scheme due to the contribution of strain gradients to the work hardening of the material, significantly lowering crack blunting and avoiding the local stress reduction that is observed if GNDs are neglected. A good agreement with experimental observations of crack tip deformation is observed.

- Very high levels of crack tip lattice hydrogen concentration are attained as a consequence of the increased dislocation density associated with gradients of plastic strain. Unlike J_2 plasticity-based predictions, the concentration of lattice hydrogen increases monotonically towards the crack tip.
- Results aim to provide insight into the embrittlement mechanisms that take place ahead of a crack. Thus, the richer description of crack tip fields provided by SGP suggests that lattice hydrogen may play a prominent role and decohesion could be readily triggered due to the high levels of stress and hydrogen concentration attained in the vicinity of the crack.

Acknowledgments

A. Díaz (University of Burgos) and R.P. Gangloff (University of Virginia) are acknowledged for helpful discussions. E. Martínez-Pañeda, S. del Busto and C. Betegón gratefully acknowledge financial support from the Ministry of Science and Innovation of Spain through grants MAT2011-28796-CO3-03 and MAT2014-58738-C3-1-R. E. Martínez-Pañeda also acknowledges financial support from the University of Oviedo through grant UNOV-13-PF. C. F. Niordson gratefully acknowledges financial support from the Danish Council for Independent Research under the research career programme Sapere Aude in the project “Higher Order Theories in Solid Mechanics”.

REFERENCES

- [1] Sanchez J, Lee SF, Martin-Rengel MA, Fullea J, Andrade C, Ruiz-Hervías J. Measurement of hydrogen and embrittlement of high strength steels. *Eng Fail Anal* 2016;59:467–77.
- [2] Gangloff RP. Hydrogen-assisted cracking in high-strength alloys. *Comprehensive Structural Integrity*6. Oxford: Elsevier; 2003. Environmentally-Assisted Fracture.
- [3] Serebrinsky S, Carter EA, Ortiz M. A quantum-mechanically informed continuum model of hydrogen embrittlement. *J Mech Phys Solids* 2004;52:2403–30.
- [4] Scheider I, Pffuff M, Dietzel W. Simulation of hydrogen assisted stress corrosion cracking using the cohesive model. *Eng Fract Mech* 2008;75:4283–91.
- [5] Alvaro A, Olden V, Akselsen OM. 3D cohesive modelling of hydrogen embrittlement in the heat affected zone of an X70 pipeline steel. *Int J Hydrogen Energy* 2013;38:7539–49.
- [6] Alvaro A, Olden V, Akselsen OM. 3D cohesive modelling of hydrogen embrittlement in the heat affected zone of an X70 pipeline steel - Part II. *Int J Hydrogen Energy* 2014;39:3528–41.
- [7] Gerberich WW, Oriani RA, Lii MJ, Chen X, Foecke T. The necessity of both plasticity and brittleness in the fracture thresholds of iron. *Philos Mag A* 1991;63:363–76.

- [8] Thomas RLS, Scully JR, Gangloff RP. Internal hydrogen embrittlement of ultrahigh-strength AERMET 100 steel. *Metall Mater Trans A* 2003;34:327–44.
- [9] Lee Y, Gangloff RP. Measurement and modeling of hydrogen environment-assisted cracking of ultra-high-strength steel. *Metall Mater Trans A* 2007;38:2174–90.
- [10] Gangloff RP, Ha HM, Burns JT, Scully JR. Measurement and modeling of hydrogen environment-assisted cracking in Monel K-500. *Metall Mater Trans A* 2014;45:3814–34.
- [11] Gangloff RP. Critical issues in hydrogen assisted cracking of structural alloys. Oxford: Elsevier Science; 2005.
- [12] Sofronis P, McMeeking RM. Numerical analysis of hydrogen transport near a blunting crack tip. *J Mech Phys Solids* 1989;37:317–50.
- [13] Stölken JS, Evans AG. A microbend test method for measuring the plasticity length scale. *Acta Mater* 1998;46:5109–15.
- [14] Fleck NA, Muller GM, Ashby MF, Hutchinson JW. Strain gradient plasticity: theory and experiment. *Acta Metall Mater* 1994;42:475–87.
- [15] Nix WD, Gao H. Indentation size effects in crystalline materials: a law for strain gradient plasticity. *J Mech Phys Solids* 1998;46:411–25.
- [16] Aifantis EC. On the microstructural origin of certain inelastic models. *J Eng Mater Technol* 1984;106:326–30.
- [17] Gao H, Huang Y, Nix WD, Hutchinson JW. Mechanism-based strain gradient plasticity I. Theory *J Mech Phys Solids* 1999;47:1239–63.
- [18] Fleck NA, Hutchinson JW. A reformulation of strain gradient plasticity. *J Mech Phys Solids* 2001;49:2245–71.
- [19] Fleck NA, Hutchinson JW, Willis JR. Strain gradient plasticity under non-proportional loading. *Proc R Soc Lond A* 2014;470:20140267.
- [20] Niordson CF, Hutchinson JW. Non-uniform plastic deformation of micron scale objects. *Int J Numer Methods Eng* 2003;56:961–75.
- [21] Bardella L. Size effects in phenomenological strain gradient plasticity constitutively involving the plastic spin. *Int J Eng Sci* 2010;48:550–68.
- [22] Klusemann B, Svendsen B, Vehoff H. Modeling and simulation of deformation behavior, orientation gradient development and heterogeneous hardening in thin sheets with coarse texture. *Int J Plast* 2013;50:109–26.
- [23] Martínez-Pañeda E, Niordson C, Bardella L. A finite element framework for distortion gradient plasticity with applications to bending of thin foils. *Int J Solids Struct* 2016. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2016.06.001>.
- [24] Martínez-Pañeda E, Niordson C, Gangloff RP. Strain gradient plasticity-based modeling of hydrogen environment assisted cracking. 2016. submitted for publication.
- [25] Wei Y, Hutchinson JW. Steady-state crack growth and work of fracture for solids characterized by strain gradient plasticity. *J Mech Phys Solids* 1997;45:1253–73.
- [26] Komaragiri U, Agnew SR, Gangloff RP, Begley MR. The role of macroscopic hardening and individual length-scales on crack tip stress elevation from phenomenological strain gradient plasticity. *J Mech Phys Solids* 2008;56:3527–40.
- [27] Nielsen KL, Niordson CF, Hutchinson JW. Strain gradient effects on steady state crack growth in rate-sensitive materials. *Eng Fract Mech* 2012;96:61–71.
- [28] Martínez-Pañeda E, Betegon C. Modeling damage and fracture within strain-gradient plasticity. *Int J Solids Struct* 2015;59:208–15.
- [29] Martínez-Pañeda E, Niordson C. On fracture in finite strain gradient plasticity. *Int J Plast* 2016;80:154–67.
- [30] Ellsner G, Korn D, Rühle M. The influence of interface impurities on fracture energy of UHV diffusion-bonded metal-ceramic bicrystals. *Scr Metall Mater* 1994;31:1037–42.
- [31] Qu S, Huang Y, Jiang H, Liu C, Wu PD, Hwang KC. Fracture analysis in the conventional theory of mechanism-based strain gradient (CMSG) plasticity. *Int J Fract* 2004;129:199–220.
- [32] Gangloff RP, Somerday BP, editors. Gaseous hydrogen embrittlement of materials in energy technologies. Cambridge: Woodhead Publishing; 2012.
- [33] Turnbull A. Perspectives on hydrogen uptake, diffusion and trapping. *Int J Hydrogen Energy* 2015;40:16961–70.
- [34] Smyshlyaev P, Fleck NA. The role of strain gradients in the grain size effect in polycrystals. *J Mech Phys Solids* 1996;44:465–95.
- [35] Niordson CF, Redanz P. Size-effects in plane strain sheet-necking. *J Mech Phys Solids* 2004;52:2431–54.
- [36] Niordson CF, Tvergaard V. Instabilities in power law gradient hardening materials. *Int J Solids Struct* 2005;42:2559–73.
- [37] Olden V, Thaulow C, Johnsen R, Østby E, Berstad T. Influence of hydrogen from cathodic protection on the fracture susceptibility of 25%Cr duplex stainless steel – constant load SENT testing and FE-modelling using hydrogen influenced cohesive zone elements. *Eng Fract Mech* 2009;76:827–44.
- [38] Mao SX, Li M. Mechanics and thermodynamics on the stress and hydrogen interaction in crack tip stress corrosion: experiment and theory. *J Mech Phys Solids* 1998;46:1125–37.
- [39] McMeeking RM. Finite deformation analysis of crack-tip opening in elastic-plastic materials and implications for fracture. *J Mech Phys Solids* 1977;25:357–81.
- [40] Di Leo CV, Anand L. Hydrogen in metals: a coupled theory for species diffusion and large elastic-plastic deformations. *Int J Plast* 2013;31:1037–42.
- [41] Olden V, Thaulow C, Johnsen R, Østby E, Berstad T. Application of hydrogen influenced cohesive laws in the prediction of hydrogen induced stress cracking in 25% Cr duplex stainless steel. *Eng Fract Mech* 2008;75:2333–51.
- [42] Huang Z, Shi Q, Chen F, Shi Y. FEM Simulation of the hydrogen diffusion in X80 pipeline steel during stacking for slow cooling. *Acta Metall Sin* 2014;27:416–21.
- [43] Taha A, Sofronis P. A micromechanics approach to the study of hydrogen transport and embrittlement. *Eng Fract Mech* 2001;68:803–37.
- [44] Ayas C, Fleck NA, Deshpande VS. Hydrogen embrittlement of a bimaterial. *Mech Mater* 2015;80:193–202.

Paper C: *Non-local plasticity effects on notch fracture mechanics*

E. Martínez-Pañeda, S. del Busto, C. Betegón

Theoretical and Applied Fracture Mechanics
92: 276-287 (2017)



Non-local plasticity effects on notch fracture mechanics

Emilio Martínez-Pañeda^{a,*}, Susana del Busto^b, Covadonga Betegón^b

^a Department of Engineering, Cambridge University, CB2 1PZ Cambridge, UK

^b Department of Construction and Manufacturing Engineering, University of Oviedo, Gijón 33203, Spain



ARTICLE INFO

Keywords:

Strain gradient plasticity
Finite element analysis
Notch
Fracture
Fatigue

ABSTRACT

We investigate the influence of gradient-enhanced dislocation hardening on the mechanics of notch-induced failure. The role of geometrically necessary dislocations (GNDs) in enhancing cracking is assessed by means of a mechanism-based strain gradient plasticity theory. Both stationary and propagating cracks from notch-like defects are investigated through the finite element method. A cohesive zone formulation incorporating monotonic and cyclic damage contributions is employed to address both loading conditions. Computations are performed for a very wide range of length scale parameters and numerous geometries are addressed, covering the main types of notches. Results reveal a strong influence of the plastic strain gradients in all the scenarios considered. Transitional combinations of notch angle, radius and length scale parameter are identified that establish the regimes of GNDs-relevance, laying the foundations for the rational application of gradient plasticity models in damage assessment of notched components.

1. Introduction

Heterogeneous plastic deformation requires additional dislocations to ensure geometric compatibility. These *geometrically necessary dislocations* (GNDs) contribute mainly to material work hardening, rather than plastic straining, by acting as obstacles to the motion of *statistically stored dislocations* (SSDs). Hence, the confinement of large gradients of plastic strain in a small volume translates into an increase of the strengthening and the hardening. This change in material response has been consistently observed in micron-scale tests (*smaller is stronger*) such as indentation [1], bending [2] or torsion [3], among many other. As a consequence, significant efforts have been devoted to the development of *strain gradient plasticity* (SGP) theories, aiming to enrich conventional plasticity by incorporating the influence of GNDs (see [4,5] and references therein). While the investigation of gradient effects was initially motivated by growing interest in micro-technology, the influence of this size dependent plastic phenomenon extends beyond micron-scale applications, as plastic strains vary over microns in a wide range of engineering designs. GNDs have proven to have a significant effect on fracture [6,7], fatigue [8,9], strengthening on TRIP steels and fiber-reinforced materials [10,11], hydrogen embrittlement [12,13], friction and contact [14,15], void growth [16], and damage [17,18]. The role of GNDs on structural integrity assessment has attracted increasing attention in recent years; stress- and strain-based gradient theories have shown that GNDs near the crack tip promote local strain hardening and lead to a much higher stress level as compared with

classic plasticity predictions [19,20]. Martínez-Pañeda and co-workers [21,22] extended the analysis of crack tip fields to the finite deformation framework, showing that this stress elevation is substantially higher when large deformations are accounted for. Their parametric studies show that the physical length over which gradient effects prominently enhance crack tip stresses may span tens of μm , highlighting the need to incorporate this GND-effect in many damage models. However, modeling efforts have been restricted to cracked specimens and the influence of GNDs on the structural integrity assessment of notched components has not been addressed yet.

Many mechanical failures originate from notch-like defects and flaws accidentally introduced in service or during the manufacturing process. Numerous studies have been conducted to model the notch-induced rise in local stresses and subsequent cracking (see, e.g. the review by Ayatollahi et al. [23]). The use of cohesive zone formulations has particularly gained popularity in this regard, as the cohesive traction-separation law constitutes a suitable tool to characterize cracking initiation and subsequent failure. Gomez and Elices used the cohesive zone model to develop a fracture criterion for both sharp and blunt V-notches [24,25], later extended to U-notches in linear elastic materials [26]. Olden et al. [27] investigated hydrogen assisted cracking in notched samples through a hydrogen-dependent cohesive zone formulation. More recently, Cendon et al. [28] addressed fracture on coarse-grained polycrystalline graphite by means of an embedded cohesive crack technique [29]. Other popular approaches involve the use of Strain Energy Density criteria (see the contributions by Berto and

* Corresponding author.

E-mail address: mail@empaneda.com (E. Martínez-Pañeda).

Lazzarin [30,31]).

In this work, strain gradient effects on notch-induced fracture are for the first time investigated. The role of GNDs in elevating the stresses ahead of notch-like defects and subsequently enhancing crack propagation is thoroughly examined under both monotonic and cyclic loading conditions. Crack tip stresses, critical loads and fatigue crack growth rates have been obtained over a wide range of length scales for different notch configurations. Finite element computations reveal important differences with conventional plasticity theory and unfold the relevance of non-local plasticity effects in notch mechanics.

2. Numerical framework

The role of non-local plasticity effects in enhancing monotonic and cyclic damage ahead of notches is here investigated by means of a cohesive zone formulation and strain gradient plasticity. Section 2.1 describes the adopted mechanism-based strain gradient (MSG) plasticity formulation and its numerical implementation. Section 2.2 provides details of the cyclic-dependent cohesive zone formulation and presents different techniques employed to deal with the mechanical instabilities intrinsically associated with these models. Section 2.3 outlines the boundary value problems under consideration and the finite element (FE) implementation.

2.1. MSG plasticity

2.1.1. Constitutive prescriptions

Grounded on the physical notion of GNDs, generated to accommodate lattice curvature due to non-uniform plastic deformation, SGP theories relate the yield strength (or the plastic work) to both strains and strain gradients; thereby introducing a length scale in the material description. At the phenomenological level, strain gradient models aim at capturing this gradient-enhanced dislocation hardening in polycrystalline metals in an average sense, without explicitly accounting for the crystal lattice, nor for the behavior of internal grain boundaries. The length parameter is therefore generally obtained by fitting experimental measurements of micro-tests through a specific SGP theory (in a way that resembles the fitting of the strain hardening exponent by means of a specific power law). Both mechanism-based [32,33] and phenomenological [34,35] isotropic SGP constitutive laws have been proposed – we here focus on the former.

The mechanism-based theory of strain gradient plasticity was proposed by Gao and co-workers [32,36] based on a multiscale framework linking the microscale concept of SSDs and GNDs to the mesoscale notion of plastic strains and strain gradients. Unlike other SGP formulations, MSG plasticity introduces a linear dependence of the square of plastic flow stress on strain gradient. This linear dependence was largely motivated by the nano-indentation experiments of Nix and Gao [1] and comes out naturally from Taylor’s dislocation model [37], on which MSG plasticity is built. Therefore, while all continuum formulations have a strong phenomenological component, MSG plasticity differs from all existing phenomenological theories in its mechanism-based guiding principles. The constitutive equations common to mechanism-based theories are summarized below; more details can be found in the original works [32,36].

In MSG plasticity, since the Taylor model is adopted as a founding principle, the shear flow stress τ is formulated in terms of the total dislocation density ρ as

$$\tau = \alpha\mu b\sqrt{\bar{\rho}} \quad (1)$$

Here, μ is the shear modulus, b is the magnitude of the Burgers vector and α is an empirical coefficient that is generally taken to be 0.5. The dislocation density is composed of the sum of the density ρ_S for SSDs and the density ρ_G for GNDs as

$$\rho = \rho_S + \rho_G \quad (2)$$

The GND density ρ_G is related to the effective plastic strain gradient η^p by:

$$\rho_G = \bar{r} \frac{\eta^p}{b} \quad (3)$$

where \bar{r} is the Nye-factor which is assumed to be 1.90 for face-centered-cubic (fcc) polycrystals. Following Fleck and Hutchinson [38], Gao et al. [32] used three quadratic invariants of the plastic strain gradient tensor to represent the effective plastic strain gradient η^p as

$$\eta^p = \sqrt{c_1 \eta_{iik}^p \eta_{jjk}^p + c_2 \eta_{ijk}^p \eta_{ijk}^p + c_3 \eta_{ijk}^p \eta_{kji}^p} \quad (4)$$

The coefficients were determined to be equal to $c_1 = 0, c_2 = 1/4$ and $c_3 = 0$ from three dislocation models for bending, torsion and void growth, leading to

$$\eta^p = \sqrt{\frac{1}{4} \eta^p \cdot \eta^p} \quad (5)$$

where the components of the strain gradient tensor are obtained by,

$$\eta_{ijk}^p = \varepsilon_{ik,j}^p + \varepsilon_{jk,i}^p - \varepsilon_{ij,k}^p \quad (6)$$

The tensile flow stress σ_{flow} is related to the shear flow stress τ by,

$$\sigma_{flow} = M\tau \quad (7)$$

where M is the Taylor factor, taken to be 3.06 for fcc metals. Rearranging Eqs. (1)–(3) and Eq. (7) yields

$$\sigma_{flow} = M\alpha\mu b \sqrt{\rho_S + \bar{r} \frac{\eta^p}{b}} \quad (8)$$

The SSD density ρ_S can be determined from (8) knowing the relation in uniaxial tension between the flow stress and the material stress-strain curve as follows

$$\rho_S = [\sigma_{ref} f(\varepsilon^p) / (M\alpha\mu b)]^2 \quad (9)$$

Here σ_{ref} is a reference stress and f is a non-dimensional function of the plastic strain ε^p determined from the uniaxial stress-strain curve. Substituting back into (8), σ_{flow} yields

$$\sigma_{flow} = \sigma_{ref} \sqrt{f^2(\varepsilon^p) + \ell \eta^p} \quad (10)$$

where ℓ is the intrinsic material length. Hence, gradient effects become negligible and the flow stress recovers the conventional plasticity solution if the characteristic length of plastic deformation outweighs the GNDs-related term $\ell \eta^p$.

2.1.2. Numerical implementation

The conventional theory of mechanism-based strain gradient (CMMSG) plasticity [33] is here chosen since, unlike its higher order counterpart, it does not suffer convergence problems in finite strain fracture problems [21,39]. As discussed in [40], the Taylor dislocation model gives the flow stress dependent on both the equivalent plastic strain ε^p and effective plastic strain gradient η^p

$$\dot{\sigma} = \frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon^p} \dot{\varepsilon}^p + \frac{\partial \sigma}{\partial \eta^p} \dot{\eta}^p \quad (11)$$

such that, for a plastic strain rate $\dot{\varepsilon}^p$ proportional to the deviatoric stress σ' , a self contained constitutive model cannot be obtained due to $\dot{\eta}^p$. In order to overcome this situation without employing higher order stresses, Huang et al. [33] adopted a viscoplastic formulation to obtain $\dot{\varepsilon}^p$ in terms of the effective stress σ_e rather than its rate $\dot{\sigma}_e$

$$\dot{\varepsilon}^p = \dot{\varepsilon} \left[\frac{\sigma_e}{\sigma_{ref} \sqrt{f^2(\varepsilon^p) + \ell \eta^p}} \right]^m \quad (12)$$

where the rate-independent limit is achieved by replacing the reference strain with the effective strain rate $\dot{\varepsilon}$ and taking the exponent to fairly large values ($m \geq 20$) [33]. The governing equations are therefore

essentially the same as those in conventional plasticity and the plastic strain gradient comes into play through the incremental plastic modulus; the constitutive equation is given by,

$$\dot{\sigma} = K \text{tr}(\dot{\epsilon})\delta + 2\mu \left\{ \dot{\epsilon}' - \frac{3\dot{\epsilon}}{2\sigma_e} \left[\frac{\sigma_e}{\sigma_{\text{ref}} \sqrt{f^2(\epsilon^p) + \ell\eta^p}} \right]^m \dot{\sigma}' \right\} \quad (13)$$

Here K being the bulk modulus and δ the Kronecker delta. Further, σ is the Cauchy stress tensor and the work-conjugate strain tensor is denoted by ϵ . Since higher order terms are not involved, the FE implementation is relatively straightforward. The plastic strain gradient is obtained by numerical differentiation within the element: the plastic strain increment is interpolated through its values at the Gauss points in the isoparametric space and afterwards the increment in the plastic strain gradient is calculated by differentiation of the shape functions. In the present finite strain analysis, rigid body rotations for the strains and stresses are carried out by means of the Hughes and Winget’s algorithm [41] and the strain gradient is obtained from the deformed configuration (see [21]). Although higher order terms are required to model effects of dislocation blockage at impermeable boundaries, one should note that higher order boundary conditions have essentially no effect on the stress distribution at a distance of more than 10 nm away from the crack tip in MSG plasticity [40,42], well below its lower limit of physical validity – the model represents an average of dislocation activities and it is therefore only applicable at a scale much larger than the average dislocation spacing (≈ 100 nm).

2.2. Cohesive zone model

We model cracking ahead of the notch-tip under monotonic and periodic loading by means of a potential-based cohesive zone formulation. In the interest of brevity, the description of the traction-separation relation and its numerical implementation are particularized for the conditions under consideration: pure mode I problems where the cohesive interface lies on the symmetry line. For details on the implementation of cohesive elements within a conventional finite element framework the reader is referred to [43].

2.2.1. Constitutive traction-separation law

The pivotal ingredient of cohesive zone models is the traction-separation law that governs material degradation and separation. The exponentially decaying cohesive law proposed by Xu and Needleman [44] is here adopted. The cohesive response is therefore characterized by the relation between the normal traction T_n and the corresponding displacement jump Δ_n as,

$$T_n = \frac{\phi_n}{\delta_n} \exp\left(-\frac{\Delta_n}{\delta_n}\right) \frac{\Delta_n}{\delta_n} \quad (14)$$

where ϕ_n denotes the normal work of separation, which is given by,

$$\phi_n = \exp(1)\sigma_{\text{max},0}\delta_n \quad (15)$$

Such that, grounded on atomistic calculations [44], the normal response is assumed to follow an exponential form, as depicted in Fig. 1. Here, σ_{max} is the interface normal strength, while δ_n refers to the characteristic opening length in the normal direction. The subscript 0 indicates that $\sigma_{\text{max},0}$ is the initial normal strength, which can be reduced due to, e.g., fatigue or environmental damage [43]. For a given shape of the traction-separation curve, the cohesive response can be fully characterized by two parameters, the cohesive energy ϕ_n and the critical cohesive strength $\sigma_{\text{max},0}$.

Cyclic damage is incorporated by means of the irreversible cohesive zone model proposed by Roe and Siegmund [45]. The model incorporates (i) loading-unloading conditions, (ii) accumulation of damage during subcritical cyclic loading, and (iii) crack surface contact. A damage mechanics approach is adopted to capture the cohesive properties degradation as a function of the number of cycles. An effective

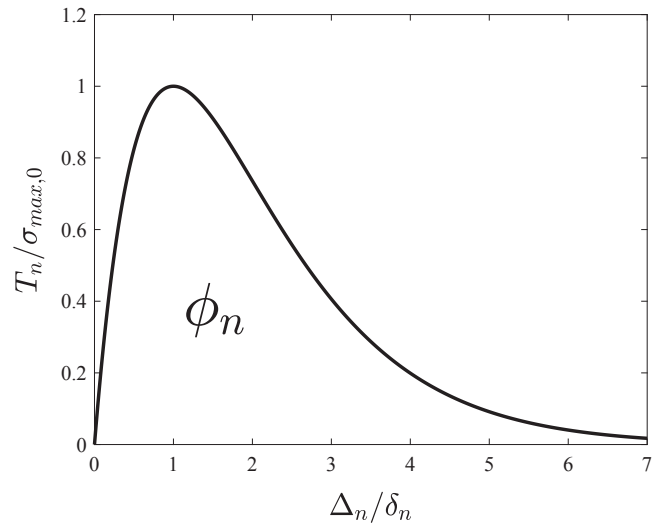


Fig. 1. Traction-separation law characterizing the cohesive zone model in the absence of cyclic damage degradation.

cohesive zone traction is consequently defined as,

$$\tilde{T} = \frac{T}{(1-D)} \quad (16)$$

with D being a damage variable that represents the effective surface density of micro defects in the interface. Accordingly, the current or effective cohesive strength σ_{max} is related to the initial cohesive strength $\sigma_{\text{max},0}$ as,

$$\sigma_{\text{max}} = \sigma_{\text{max},0}(1-D) \quad (17)$$

A damage evolution law is defined that incorporates the relevant features of continuum damage approaches, namely: (i) damage accumulation starts if a deformation measure is greater than a critical magnitude, (ii) the increment of damage is related to the increment of deformation, and (iii) an endurance limit exists below which cyclic loading can proceed infinitely without failure. From these considerations, cyclic damage evolution is given by,

$$\dot{D}_c = \frac{|\dot{\Delta}_n|}{\delta_\Sigma} \left[\frac{T_n}{\sigma_{\text{max}}} - \frac{\sigma_f}{\sigma_{\text{max},0}} \right] H(\bar{\Delta}_n - \delta_n) \quad (18)$$

with $\bar{\Delta}_n = \int |\dot{\Delta}_n| dt$ and H denoting the Heaviside function. Two new parameters have been introduced: σ_f , the cohesive endurance limit and δ_Σ , the accumulated cohesive length. The latter is used to scale the normalized increment of the effective material separation. The model must also incorporate damage due to monotonic loading; as a consequence, the damage state is defined as the maximum of the cyclic and monotonic contributions,

$$D = \int \max(\dot{D}_c, \dot{D}_m) dt \quad (19)$$

being \dot{D}_m generally defined as,

$$\dot{D}_m = \frac{\max(\Delta_n)_{t_i} - \max(\Delta_n)_{t_{i-1}}}{4\delta_n} \quad (20)$$

and updated only when the largest stored value of Δ_n is greater than δ_n . Here, t_{i-1} denotes the previous time increment and t_i the current one. The same modeling framework can be therefore employed for monotonic and cyclic loading case studies, as it is the case of the present work. Moreover, the cohesive response must be defined for the cases of unloading/reloading, compression, and contact between the crack faces. Unloading is defined based on the analogy with an elastic–plastic material undergoing damage. Thereby, unloading takes place with the stiffness of the cohesive zone at zero separation, such that

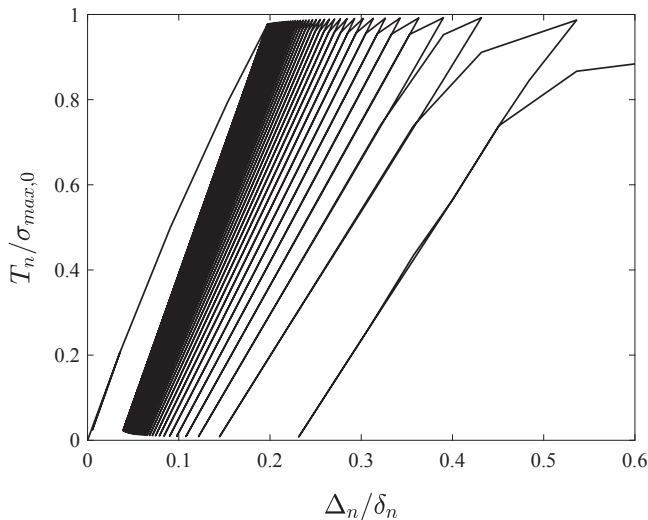


Fig. 2. Representative cohesive response under stress-controlled cyclic loading conditions.

$$T_n = T_{max} + \left(\frac{\exp(1)\sigma_{max}}{\delta_n} \right) (\Delta_n - \Delta_{max}) \tag{21}$$

where Δ_{max} is maximum separation value that has been attained and T_{max} its associated traction quantity. Compression behavior applies when the unloading path reaches $\Delta_n = 0$ at $T_n < 0$. In such circumstances, the cohesive response is given by,

$$T_n = \frac{\phi_n}{\delta_n} \left(\frac{\Delta_n}{\delta_n} \right) \exp\left(-\frac{\Delta_n}{\delta_n}\right) + T_{max} - \sigma_{max} \exp(1) \frac{\Delta_{max}}{\delta_n} + \alpha \sigma_{max,0} \exp(1) \frac{\Delta_n}{\delta_n} \exp\left(-\frac{\Delta_n}{\delta_n}\right) \tag{22}$$

being α a penalty factor that is taken to be equal to 10, following [45]. Contact conditions are enforced if Δ_n is negative and the cohesive element has failed completely ($D = 1$). At this instance the cohesive law renders,

$$T_n = \alpha \sigma_{max,0} \exp(1) \exp\left(-\frac{\Delta_n}{\delta_n}\right) \frac{\Delta_n}{\delta_n} \tag{23}$$

where friction effects have been neglected. Fig. 2 shows the cohesive response obtained under stress-controlled cyclic loading $\Delta\sigma/\sigma_{max,0} = 1$ with a zero stress ratio. The accumulated separation increases with the number of loading cycles, such that it becomes larger than δ_n and fatigue damage starts to play a role, lowering the stiffness and the cohesive strength.

2.2.2. Control algorithm

The softening part of the traction-separation law gives rises to a local stiffness degradation in the corresponding cohesive elements, which triggers elastic snap-back instabilities. Hence, at the point where the stress reaches the peak strength of the interface, quasi-static finite element computations are unable to converge to an equilibrium solution, hindering the modeling of the post-instability behavior. We here propose prescribing the opening displacement at the incipient crack while leaving the remote loading as a variable. This can be achieved by means of mixed FE-Rayleigh-Ritz formulations [46] or control algorithms [47,48]; the latter approach is here adopted. Hence, as first described by Segurado and Llorca [47], the simultaneous reduction of the load and the displacement at the load point can be captured by finding a variable that increases monotonically during the whole loading history. Here, in the context of a symmetric model, we choose to prescribe the sum of the relative opening displacements ahead of the notch tip. An auxiliary element is created that connects the vertical

displacement of the nodes ahead of the notch tip (N_1, N_2, \dots, N_n) with a control node N_c ,

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & 1 & \dots & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_y^{N_1} \\ u_y^{N_2} \\ \vdots \\ u_y^{N_c} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_y^{N_1} \\ f_y^{N_2} \\ \vdots \\ f_y^{N_c} \end{pmatrix} \tag{24}$$

such that the average opening displacement is linearly related to the vertical force in the control node. The displacement in such control node is then equated to the vertical load in one of the nodes in the outer boundary N_L , where a remote displacement is generally prescribed. A second auxiliary element is defined for this purpose,

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_y^{N_L} \\ u_y^{N_c} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_y^{N_L} \\ f_y^{N_c} \end{pmatrix} \tag{25}$$

In that way the average opening is prescribed by imposing a vertical force on the control node, and the displacement at the outer boundary is an outcome of the equilibrium solution.

The aforementioned control algorithm cannot, however, be used for cyclic loading, where we want to make sure that the external load follows a specific (sinusoidal) behavior. In some of the fatigue computations numerical convergence has been facilitated by employing the viscous regularization technique proposed by Gao and Bower [49]. Such scheme leads to accurate results if the viscosity coefficient is sufficiently small – a sensitivity study has been conducted in the few cases where viscous regularization was needed.

2.3. Finite element implementation

The aforementioned numerical model is implemented in the commercial finite element package ABAQUS. The MSG plasticity model is incorporated by means of a user material subroutine (UMAT), while a user element subroutine (UEL) is employed for the cohesive element formulation. Results post-processing is carried out in MATLAB by making use of *Abaqus2Matlab* [50], a novel tool that connects the two well-known aforementioned software suites.

We illustrate the effect of strain gradient theories on notch mechanics by investigating the main types of notches. Namely, (i) sharp V-notches with different angles, (ii) blunted V-notches with different tip radii, and (iii) U-notches with different radii. Hence, as described in Fig. 3, a notched plate of height $H = 80$ mm, width $W = 0.3125H$, and notch ligament $B = 0.25H$, is considered as reference geometry in all cases. Only the upper half of the specimen is shown, as we take advantage of symmetry. Plane strain conditions are assumed and all computations account for large strains and rotations. After a sensitivity study, a very fine mesh is used, with the size of the elements ahead of the crack being significantly smaller than the characteristic length of the fracture process zone ($\approx R_0/500$),

$$R_0 = \frac{1}{3\pi(1-\nu^2)} \frac{E\phi_n}{\sigma_Y^2} = \frac{1}{3\pi} \left(\frac{K_0}{\sigma_Y} \right)^2 \tag{26}$$

Here, E is Young’s modulus, σ_Y the yield stress and ν Poisson’s ratio. Higher order elements are used in all cases: 8-node quadrilateral elements with reduced integration are employed to model the bulk response and crack initiation and growth are captured by 6-node quadrilateral cohesive elements with 12 integration points. A reference stress intensity factor is defined from the cohesive crack,

$$K_0 = \sqrt{\frac{E\phi_n}{1-\nu^2}} \tag{27}$$

such that an associated reference remote stress, σ_0 , can be defined from fracture mechanics considerations ($K = \sigma\sqrt{\pi a}$, for a geometrical factor equal to 1). Accordingly, one can make use of a reference external load,

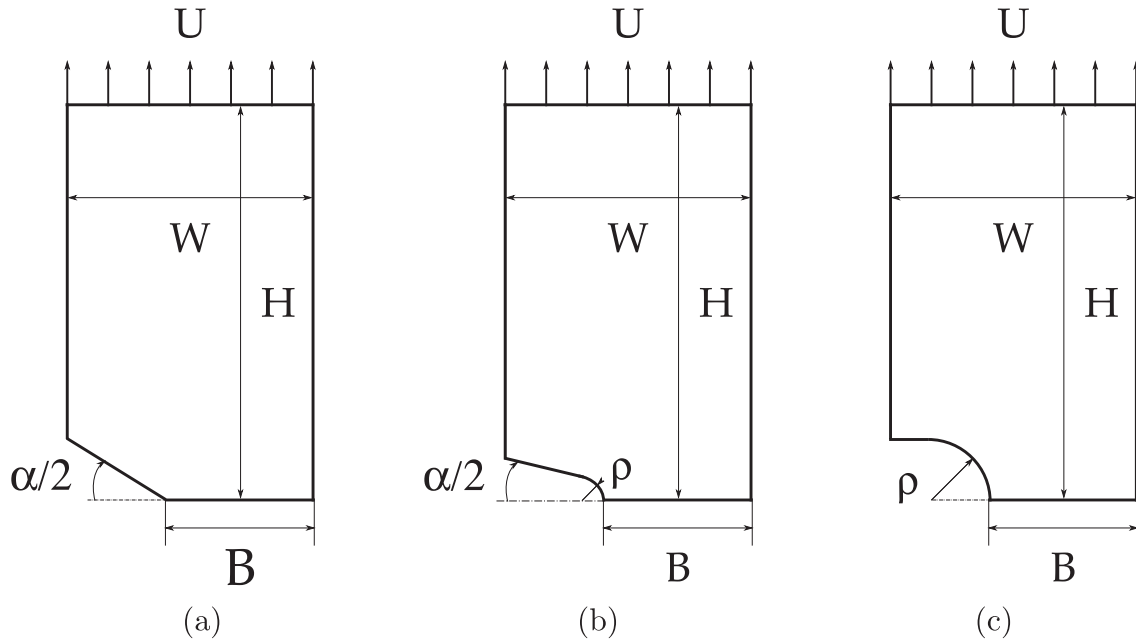


Fig. 3. Geometry of the notched plates under consideration, (a) sharp V-notch, (b) blunted V-notch, and (c) U-notch.

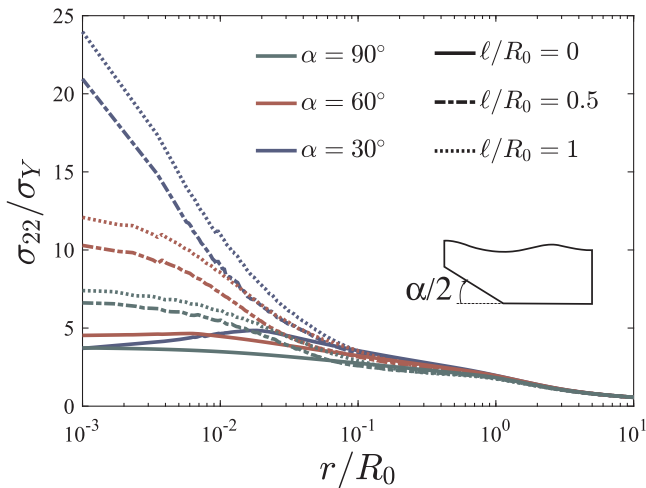


Fig. 4. Notch tip opening stresses for the sharp V-notch case. Results are shown for different angles and different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, and $N = 0.2$.

P_0 , by dividing the reference remote stress by the notch ligament and the thickness. Dimensional analysis of this set of parameters reveals that the solution, given by the external force P , depends on the following dimensionless combinations,

$$\frac{P}{P_0} = F\left(\frac{\rho}{R_0}, \frac{\sigma_Y}{E}, \frac{\Delta a}{R_0}, \frac{\sigma_{max}}{\sigma_Y}, \frac{\ell}{R_0}, n, \nu, \alpha\right) \quad (28)$$

where ρ denotes the notch radius (see Fig. 3), Δa the crack extension and F is a dimensionless function of the arguments displayed. We investigate the notch fracture resistance of a steel of $\sigma_Y/E = 0.003$, Poisson’s ratio $\nu = 0.3$ and an isotropic hardening response given by,

$$\sigma = \sigma_Y \left(1 + \frac{E\varepsilon_p}{\sigma_Y}\right)^{(1/n)} \quad (29)$$

with the strain hardening exponent being equal to $n = 5$. The reference stress in Eq. (10) is therefore given by $\sigma_{ref} = \sigma_Y(E/\sigma_Y)^{(1/n)}$ and $f(\varepsilon^P) = (\varepsilon^P + \sigma_Y/E)^{(1/n)}$. The length scale parameter is varied over a very wide range so as to cover the whole spectrum of experimentally

reported values.

3. Results

The role of geometrically necessary dislocations in compromising the structural integrity of notched components is here investigated by strain gradient plasticity computations of: (i) stationary notch tip fields (Section 3.1), (ii) cohesive crack propagation under monotonic loading conditions (Section 3.2), and (iii) fatigue crack growth (Section 3.3).

3.1. Stationary notch tip fields

We first investigate the influence of plastic strain gradients ahead of the notch tip in elevating the stresses so as to isolate the analysis of gradient effects from the cohesive description of damage. Hence, the opening stress σ_{22} is computed for the three different geometries outlined in Fig. 3, considering for each case different notch radii and angles. Results are presented ahead of the notch with the distance to the tip normalized by the reference size of the fracture process zone, given by the last expression in Eq. (26). Here, the reference stress intensity factor K_0 is taken as the external load K_I , which is computed from the stress at the remote boundary σ_R (see description in Section 2.3). By considering a geometrical factor equal to 1 in all configurations, R_0 provides a quantitative description of the external load.

Finite element results obtained for the sharp V-notch geometry are shown in Fig. 4. The opening stress ahead of the extended notch plane is shown for three different angles of the initial notch opening ($\alpha = 30^\circ, \alpha = 60^\circ$ and $\alpha = 90^\circ$) and three values of the length scale parameter ($\ell/R_0 = 0, \ell/R_0 = 0.5$ and $\ell/R_0 = 1$). The figure shows a very significant stress elevation, relative to the conventional plasticity case ($\ell/R_0 = 0$), when the GND-effect is accounted for. This outcome of the GND promoted hardening increases with the length parameter, in agreement with expectations, and is particularly enhanced, for a given external load, by decreasing the notch angle. The differences are particularly meaningful for the smallest radius, where the gradient-enhanced stresses are 4–5 times larger than the conventional plasticity predictions in the vicinity of the notch tip. This stress elevation, that falls short of attaining the theoretical lattice strength ($E/10$), is relevant in a domain that spans one-tenth of the plastic zone size (R_0 resembles the plastic zone length for this crack-like geometry); far from the notch

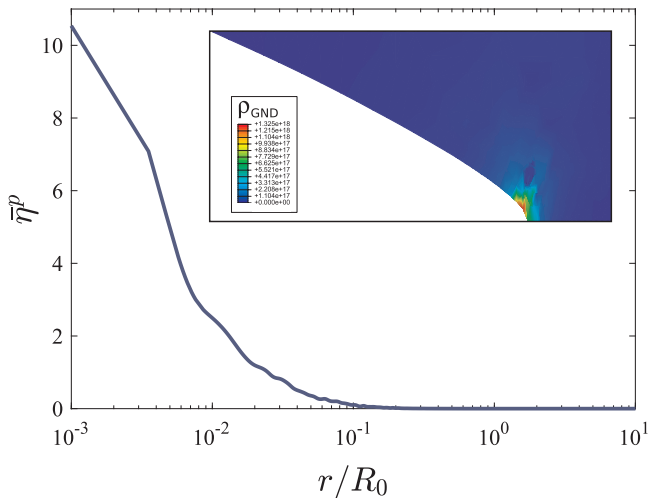


Fig. 5. Normalized effective plastic strain gradient $\bar{\eta}^p = R_0 \eta^p$ ahead of the notch tip for the sharp V-notch specimen with $\alpha = 30^\circ$. The embedded figure represents the GND density contours in m^{-2} . Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, and $\ell/R_0 = 1$.

tip both conventional and strain gradient plasticity solutions agree.

Further insight is gained by looking at the effective plastic strain gradient ahead of the notch, along with the associated GND contours. Fig. 5 shows a normalized effective plastic strain gradient $\bar{\eta}^p = R_0 \eta^p$ for the geometry with a notch radius of $\alpha = 30^\circ$ and a length scale parameter of $\ell/R_0 = 1$. Results reveal a very meaningful increase of the plastic strain gradients within a fraction of the plastic zone. GNDs are generated to accommodate this nonhomogeneous plastic deformation, promoting strain hardening and leading to notch tip stresses that are much larger than those predicted using conventional continuum theories.

The opening stress distribution is also computed for the blunted V-notch case and the results obtained are shown in Fig. 6. Different notch radii have been considered and a notch angle of $\alpha = 30^\circ$ has been chosen for all calculations related to the blunted V-notch geometry in this work. Results reveal an increase of the stress level with decreasing the notch radius, as it could be expected. Again, both gradient-enhanced and conventional plasticity predictions agree far from the notch but differences arise as the distance to the tip decreases. The GND-enriched prediction leads to stresses close to the notch tip that are at least 2 times those of conventional plasticity, and that could be up to 4 times

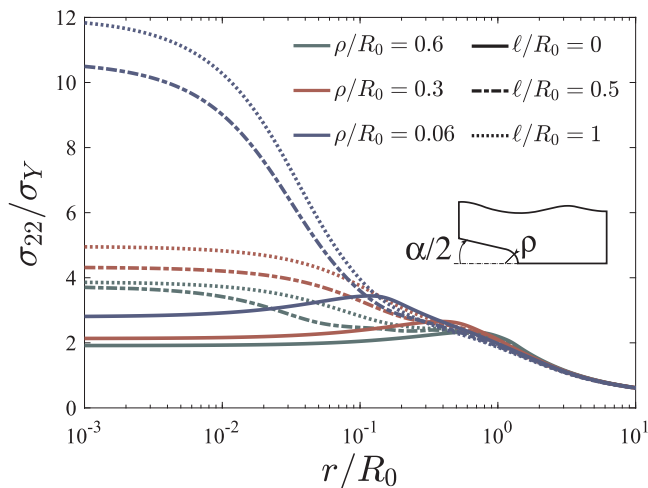


Fig. 6. Notch tip opening stresses for the blunted V-notch case. Results are shown for different notch radii and different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, and $N = 0.2$.

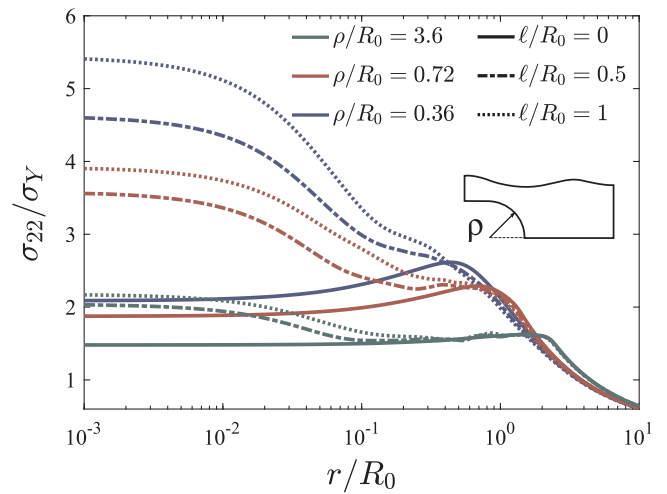


Fig. 7. Notch tip opening stresses for the U-notch case. Results are shown for different notch radii and different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, and $N = 0.2$.

for the smallest notch radius considered.

Similar qualitative results are observed for the U-notch geometry (see Fig. 7). For a given load, the stresses increase with diminishing notch radius and significant differences between conventional and strain gradient plasticity solutions can be observed. Crack tip stresses are 1.5–2.5 times larger when GNDs are not neglected and the domain where these differences takes place can be on the order of R_0 . This gradient-dominated region decreases significantly as the notch radius increases.

By comparing the results obtained for the three geometries under consideration one can see that the degree of stress elevation is higher for the crack-like sharp V-notch, as it could be expected *a priori*. The differences in the peak stress level with conventional plasticity are higher for the blunted V-notch than for the U-notch, as the notch radii are smaller; the tip radius of a blunted V-notch is typically much smaller than the defect radius of a U-notched specimen. However, the inverse trend is obtained with respect to the size of the gradient dominated zone under the same external load. U-notch specimens show the largest physical length-scale over which strain gradients are prominent, followed by the blunted V-notch specimens. Smaller notch angles and radii lead to shorter GND domains (as they scale with the plastic zone region) but to much steeper gradients of plastic strain. Hence, the size of the defect characterizes the GND influence, which is bounded between two cases: (a) a micron-scale GND region with much higher stresses than those attained with conventional models, and (b) a larger gradient-dominated length with a lesser stress elevation.

3.2. Monotonic loading

Crack initiation and consequent propagation under monotonic loading conditions is subsequently investigated by making use of the cohesive zone formulation described in Section 2.2. The specimens are loaded by using a control algorithm (see Section 2.2.2) and the macroscopic response is captured beyond the point of unstable crack propagation. Fig. 8 shows the force versus displacement curve obtained for the sharp V-notch specimen for the intermediate case of $\alpha = 60^\circ$. Results are shown normalized, representing the abscissa axis a measure of the applied deformation. Both conventional plasticity and strain gradient plasticity have been considered, the latter through a wide range of length scale parameters.

As shown in Fig. 8 the load increases up to a critical point, where a sudden snap-back response is observed as a consequence of the propagation of the crack from the notch tip. The use of the control algorithm described in Section 2.2.2 enables to track the equilibrium

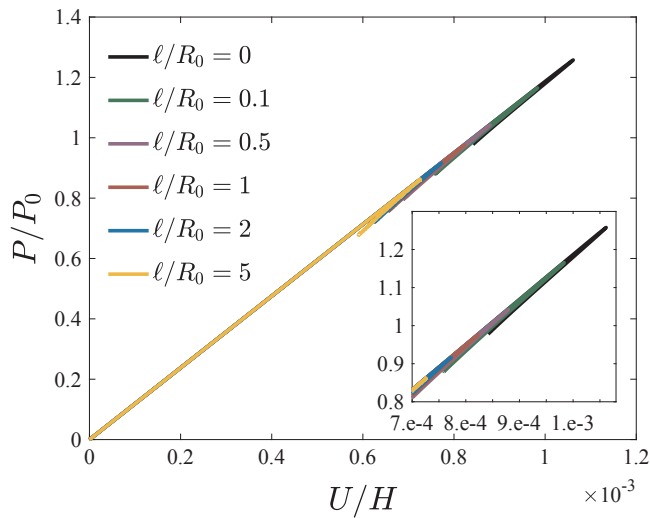


Fig. 8. Applied load versus remote strain for the sharp V-notch case with $\alpha = 60^\circ$. Results are shown for both conventional plasticity and MSG plasticity with different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$ and $\sigma_{max,0} = 3.5\sigma_Y$.

solution throughout this unstable behavior where both the load and the displacement decrease. This critical point corresponds to the maximum load carrying capacity of the structure and will be subsequently denoted as P_{max} . Gradient-enriched results show how the stress elevation associated with dislocation hardening reduces P_{max} ; more than a 30% decrease in the maximum carrying capacity is observed for the largest value of ℓ . The detrimental effect of GNDs on structural integrity is therefore not only restricted to infinitesimally sharp cracks but also present in notch-like defects.

The remote stress versus crack extension is shown in Fig. 9 for the same configuration. Here, σ_R is obtained by measuring the vertical stress component in the element located in the upper left corner. In agreement with Fig. 8, the maximum remote stress that can be attained decreases significantly with augmenting ℓ . Moreover, results reveal that the peak load at the outer boundary is reached at smaller crack sizes as the length parameter increases; this is due to the lower plastic dissipation that takes place. Hence, increasing the gradient contribution raises notch tip stresses, reducing the ductility and triggering fracture for lower values of the remote load.

The influence of the plastic strain gradients on lowering the critical

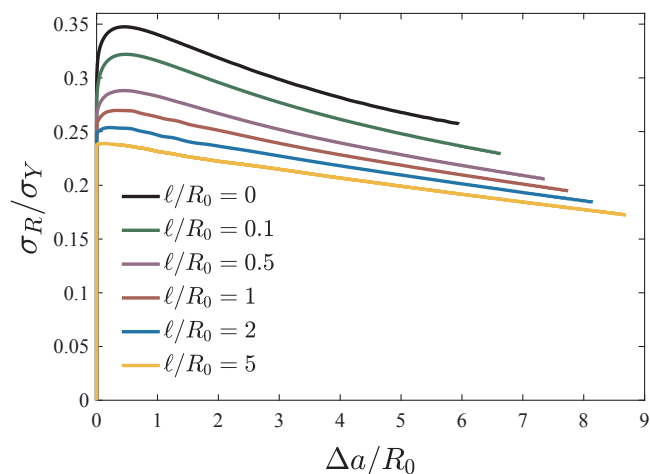


Fig. 9. Remote stress versus crack extension for the sharp V-notch case with $\alpha = 60^\circ$. Results are shown for both conventional plasticity and MSG plasticity with different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$ and $\sigma_{max,0} = 3.5\sigma_Y$.

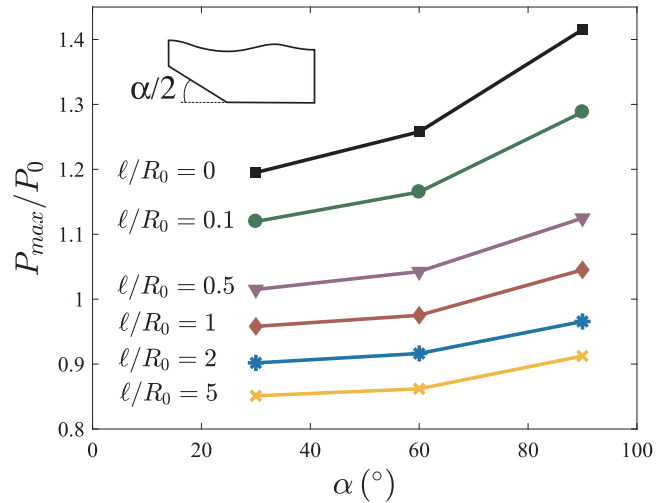


Fig. 10. Critical load versus notch angle for the sharp V-notch case. Results are shown for both conventional plasticity and MSG plasticity with different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$ and $\sigma_{max,0} = 3.5\sigma_Y$.

load in sharp V-notch specimens is quantified for three different angles. As shown in Fig. 10, as the notch angle decreases, the maximum force that can be attained decreases. This qualitative behavior can be easily understood from Fig. 4 – higher notch tip stresses are attained with lower angles. A very strong gradient effect can be observed for the three cases; increasing l/R_0 increases the GND density, elevating the local stresses and lowering the critical force.

The critical load is also computed for the blunted V-notch specimen for different notch radii and the same range of l/R_0 as in the sharp V-notch case; results are shown in Fig. 11. In agreement with the stationary notch tip stress calculations, lower P_{max} values are attained by decreasing the notch radii. As in the sharp V-notch specimens, the GND effect persists for all the configurations examined. However, differences with conventional plasticity appear to be percentually higher for larger notch radii. This is undoubtedly grounded on the fact that all calculations have been conducted for the same cohesive strength – for a given $\sigma_{max,0}$, failure takes place at lower load levels for smaller notch radii, and gradient effects decrease with the external load (not enough plasticity builds up, see [21,22]). Results are therefore sensitive to the choice of the cohesive strength.

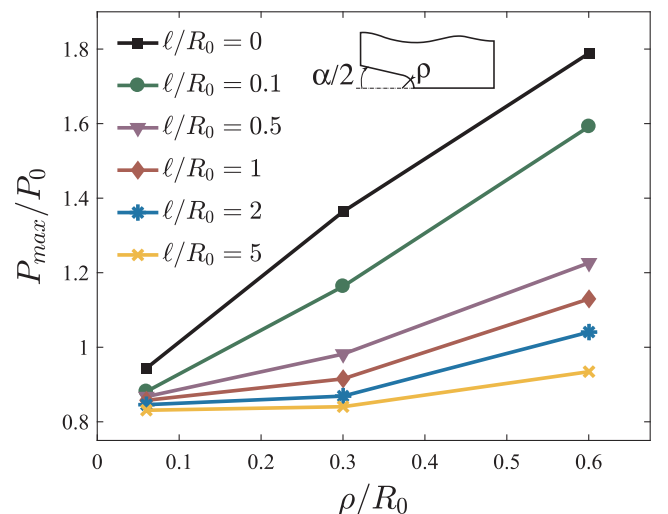


Fig. 11. Critical load versus notch radius for the blunted V-notch case for $\alpha = 30^\circ$. Results are shown for both conventional plasticity and MSG plasticity with different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$ and $\sigma_{max,0} = 2.5\sigma_Y$.

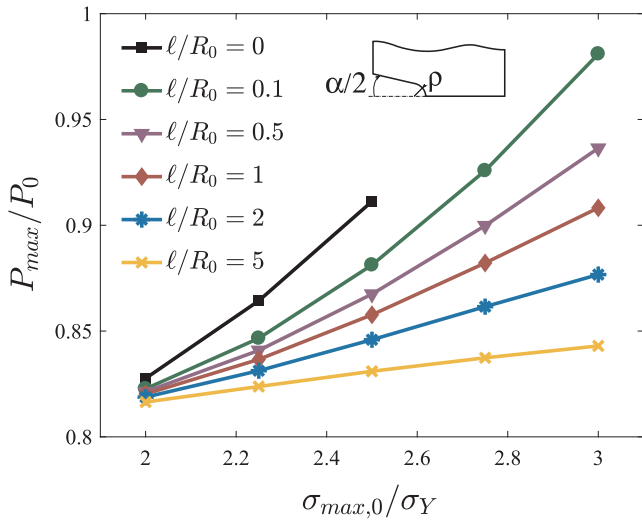


Fig. 12. Critical load versus cohesive strength for the blunted V-notch specimen with notch radius $\rho/\delta_n = 15.8$ and $\alpha = 30^\circ$. Results are shown for both conventional plasticity and MSG plasticity with different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$ and $N = 0.2$.

The variation of the maximum load with the cohesive strength for one particular notch radius is given in Fig. 12. The length parameter and the reference load have been computed for each $\sigma_{max,0}/\sigma_Y$ to account for the influence of the cohesive strength on the fracture energy. As shown in the figure, higher critical loads are attained for larger values of $\sigma_{max,0}$ – the higher the cohesive strength, the more plastic dissipation contributes to the total energy release rate. Moreover, results show that differences between conventional and strain gradient plasticity increase significantly with increasing $\sigma_{max,0}$. Lower cohesive strengths can be attained for very small external loads, intrinsically associated with low levels of plastic deformation. Quantitative differences between conventional and gradient-enhanced constitutive relations are therefore sensitive to the value of $\sigma_{max,0}$. One should however note that the choice of cohesive strength is bounded by the maximum stress levels that can be attained with conventional plasticity. As shown in Fig. 12 no cracking is predicted for $l/R_0 = 0$ if $\sigma_{max,0}/\sigma_Y$ is higher than 2.5. From a physical viewpoint, it seems unlikely that an atomistically-grounded cohesive strength could be only 2.5 times the yield stress; accounting for the role of GNDs enables to consider more meaningful values. The quantitative differences reported between SGP and classic plasticity can therefore be substantially higher if σ_{max} is increased.

Finally, the peak load is computed for the U-notch case as a function of the notch radii and the length scale parameter. As shown in Fig. 13, the maximum load increases with the notch radii, as reported in the blunted V-case. Important differences can be observed between classic and strain gradient plasticity formulations over the whole range of notch radii examined. Again, such differences seem to increase with the notch radii due to the larger loads involved.

3.3. Cyclic loading

We subsequently investigate notch-induced failure in the presence of cyclic loads. In order to do so we scale in time the external load by a sinusoidal function. The cyclic boundary conditions prescribed are characterized by the stress amplitude $\Delta\sigma = \sigma_{max} - \sigma_{min}$ and the stress ratio $R = \sigma_{min}/\sigma_{max}$. An initial prestressing is defined, such that the mean load equals the load amplitude, and both R and $\Delta\sigma$ remain

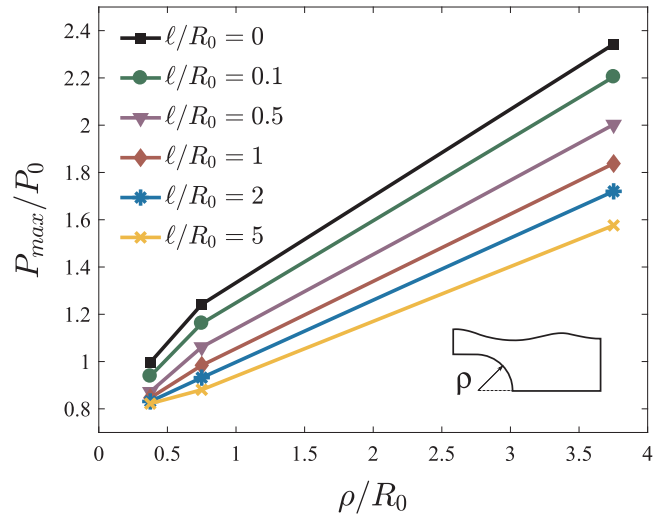


Fig. 13. Critical load versus notch radius for the U-notch case. Results are shown for both conventional plasticity and MSG plasticity with different values of the length scale parameter. Material properties: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$ and $\sigma_{max,0} = 2\sigma_Y$.

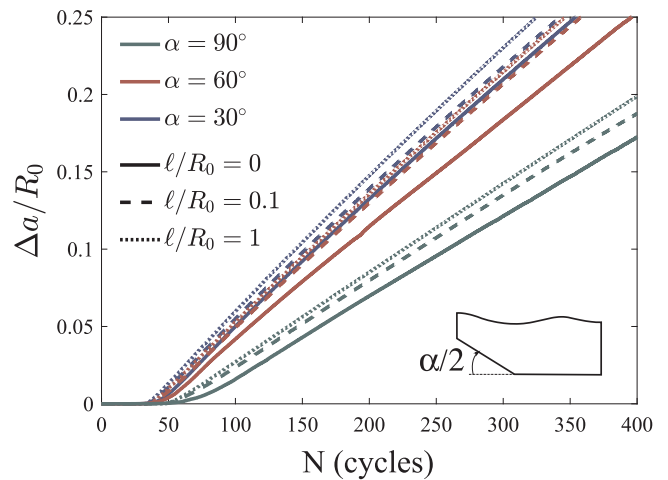


Fig. 14. Crack extension versus number of cycles for the sharp V-notch case with $\Delta\sigma/\sigma_Y = 0.06$. Results are shown for different angles and different values of the length scale parameter. Problem parameters: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, $\sigma_{max,0} = 3.75\sigma_Y$ and $R = 0.1$.

constant throughout the analysis. A stress ratio of $R = 0.1$ is adopted throughout the study and, following [45], the accumulated cohesive length in (18) is chosen to be $\delta_\Sigma = 4\delta_n$ and the endurance coefficient $\sigma_f/\sigma_{max,0} = 0.25$. We use the same isotropic hardening law that has been used for the computation of the stationary notch tip fields and the cohesive crack propagation under monotonic loading. This choice comes at the cost of not being able to capture the Bauschinger effect displayed by many metallic materials under low load ratios. One should however note that our goal is to compare the responses obtained from classic and strain gradient plasticity theories under the same conventional hardening relation. Since gradient effects increase with plastic dissipation (see Sections 3.1 and 3.2), one would expect that the differences observed with isotropic hardening will be magnified if a kinematic hardening law is used. Taylor-based strain gradient plasticity models have been previously used with isotropic-like hardening laws to model fatigue in cracked components by Brinckmann and Siegmund [8,9].

Fig. 14 shows the crack extension in a sharp V-notched specimen as a function of the number of cycles for an stress amplitude of

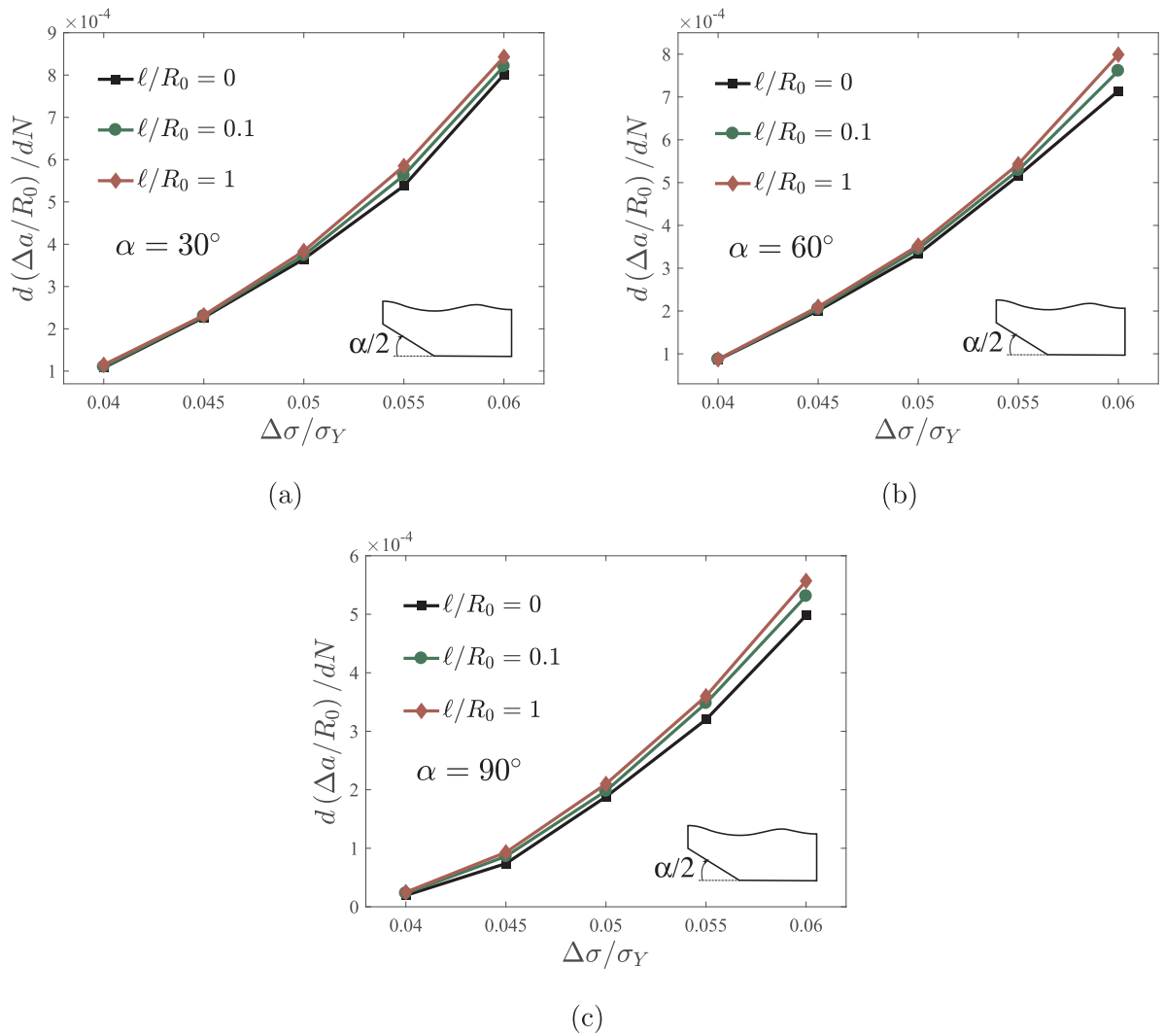


Fig. 15. Fatigue crack growth rate versus stress amplitude for the sharp V-notch case with different notch angles: (a) $\alpha = 30^\circ$, (b) $\alpha = 60^\circ$, and (c) $\alpha = 90^\circ$. Results are shown for different values of the length scale parameter. Problem parameters: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, $\sigma_{max,0} = 3.75\sigma_Y$ and $R = 0.1$.

$\Delta\sigma/\sigma_Y = 0.06$. Three notch angles have been considered, along with three different combinations of ℓ/R_0 . Relative to conventional plasticity predictions, SGP results show that: (i) cracking initiates before, and (ii) fatigue crack growth rates increase. These trends are observed in all the scenarios examined.

Fatigue crack growth rates are computed for a wide range of stress amplitudes and results are shown in Fig. 15. In all cases an increase of the fatigue crack growth rates when increasing the external load and the length scale parameter can be observed. In addition, the GND-influence seems to increase with the external loads, although differences are not significant. Very little differences are in fact observed for the lower $\Delta\sigma/\sigma_Y$ bound, as cyclic damage reduces the cohesive strength and cracking takes place in the presence of considerable less plastic flow than in the monotonic case. As in Fig. 14, fatigue crack growth rates increase as the notch angle decreases, for both conventional and gradient plasticity flow rules.

Cyclic crack propagation is also investigated for the blunted V-notched case. The results obtained in terms of crack extension as a function of the number of cycles are shown in Fig. 16. The finite element analysis reveals an increase on the fatigue crack growth rates and

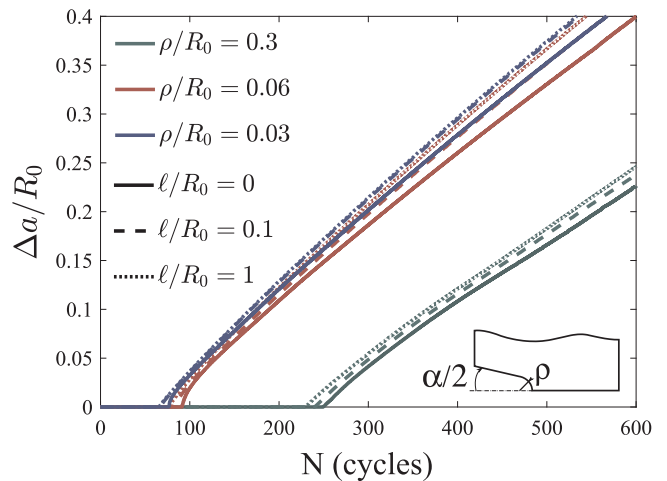


Fig. 16. Crack extension versus number of cycles for the blunted V-notch case with $\Delta\sigma/\sigma_Y = 0.04$. Results are shown for different notch radii and different values of the length scale parameter. Problem parameters: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, $\sigma_{max,0} = 2.5\sigma_Y$ and $R = 0.1$.

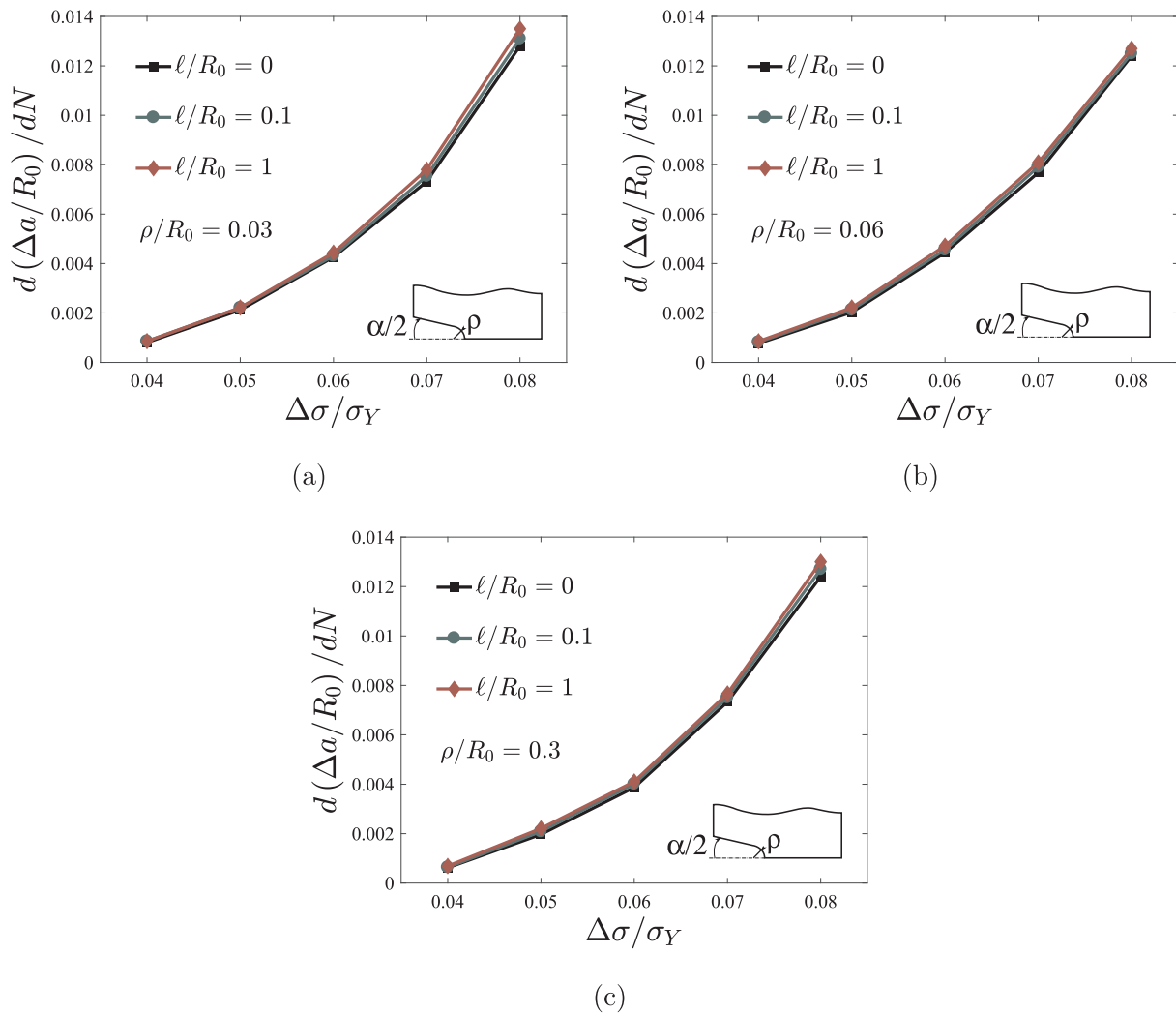


Fig. 17. Fatigue crack growth rate versus stress amplitude for the blunted V-notch case with different notch radii: (a) $\rho/R_0 = 0.03$, (b) $\rho/R_0 = 0.06$, and (c) $\rho/R_0 = 0.3$. Results are shown for different values of the length scale parameter. Problem parameters: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, $\sigma_{max,0} = 2.5\sigma_Y$ and $R = 0.1$.

a decrease on the crack initiation cycle with augmenting ℓ/R_0 . It can also be observed that smaller notch radii lead to slightly higher fatigue crack growth rates.

Fig. 17 quantifies fatigue crack growth rates as a function of the external load for the blunted V-notch specimens. Results show very little sensitivity to the notch radii. This also holds true for the GND-effect, which seems to be much more sensitive to the external load rather than the geometry; differences with conventional plasticity increase as $\Delta\sigma$ increases.

Similar qualitative trends are observed for the U-notch geometry. Fig. 18 shows the crack extension versus the number of loading cycles for three notch radii and three length scale parameters. Again, the number of cycles required to initiate cracking reduces with larger ℓ/R_0 and smaller notch radii, and gradient effects translate into an increase of the fatigue crack growth rates.

Normalized fatigue crack growth rates da/dN in U-notched specimens are shown as a function of the stress ratio in Fig. 19. Differences between SGP and conventional plasticity increase with the external load, as in the sharp and blunted V-notched cases. Results show nevertheless little sensitivity, particularly for smaller stress amplitudes.

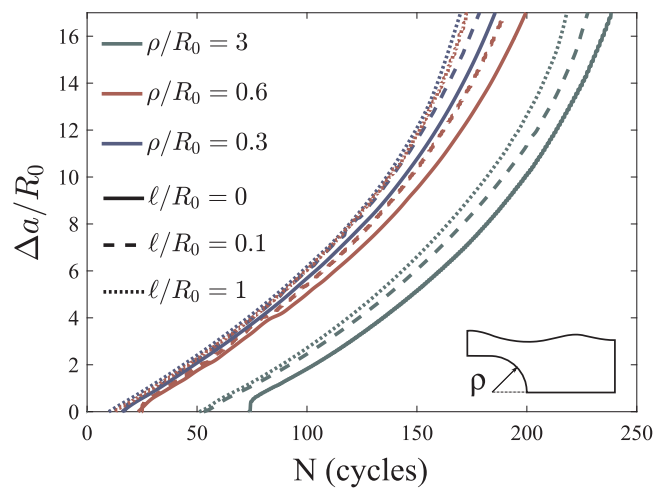


Fig. 18. Crack extension versus number of cycles for the U-notch case with $\Delta\sigma/\sigma_Y = 0.13$. Results are shown for different notch radii and different values of the length scale parameter. Problem parameters: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, $\sigma_{max,0} = 2.5\sigma_Y$ and $R = 0.1$.

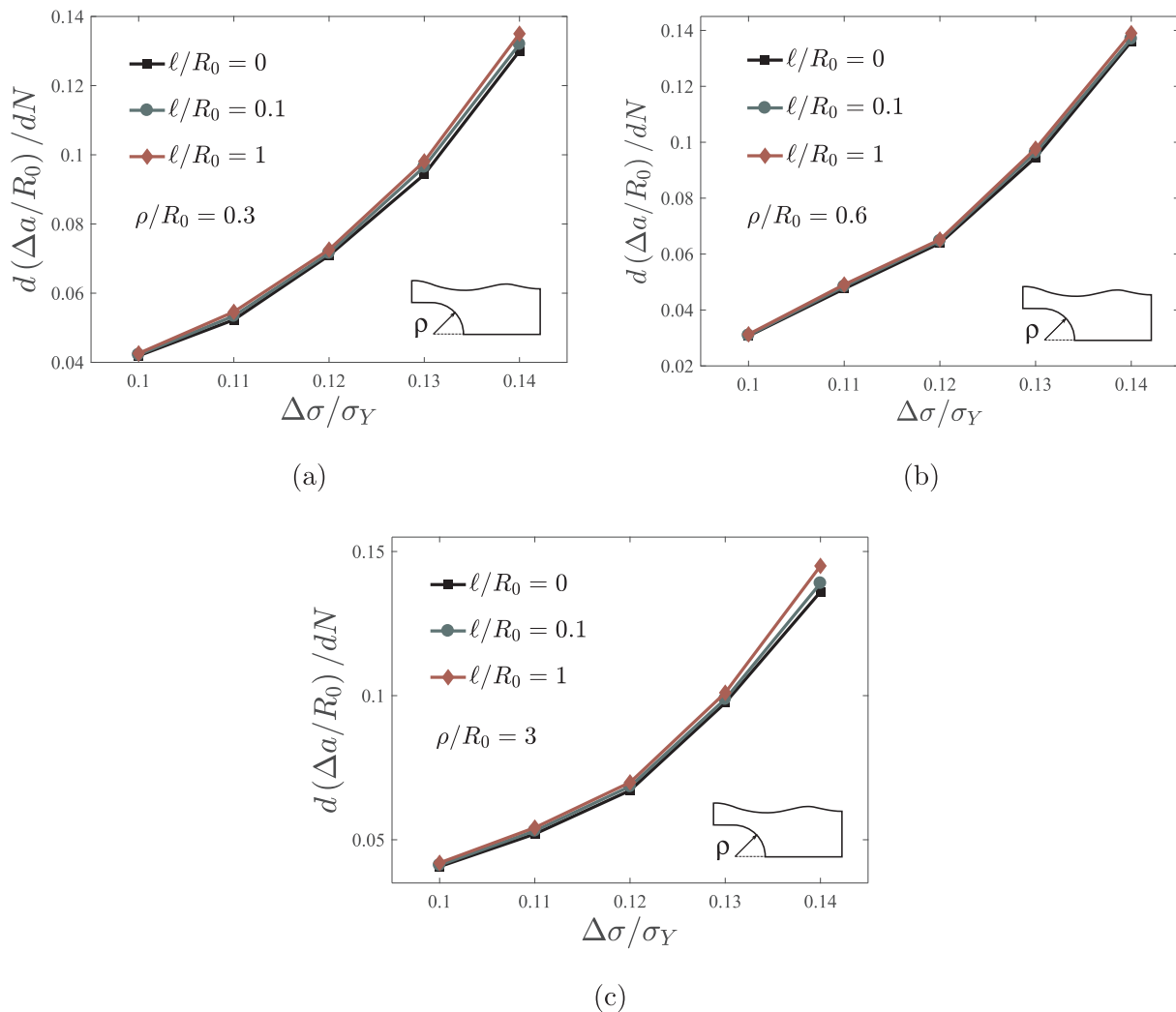


Fig. 19. Fatigue crack growth rate versus stress amplitude for the U-notch case with different notch radii: (a) $\rho/R_0 = 0.3$, (b) $\rho/R_0 = 0.6$, and (c) $\rho/R_0 = 3$. Results are shown for different values of the length scale parameter. Problem parameters: $\sigma_Y/E = 0.003$, $\nu = 0.3$, $N = 0.2$, $\sigma_{max,0} = 2.5\sigma_Y$ and $R = 0.1$.

4. Conclusions

The first investigation on the role of plastic strain gradients in notched assisted failure has been presented. The influence of geometrically necessary dislocations (GNDs) in elevating the stresses ahead of the notch tip is thoroughly examined by means of a mechanism-based strain gradient plasticity theory. A total of 9 different geometries have been considered from the most common notch types: sharp V (with 3 angles), blunted V (with 3 radii) and U (with 3 radii). A comprehensive finite element investigation has been conducted including the analysis of stationary notch tip stresses, and crack propagation under monotonic and cyclic loading. A suitable cohesive zone formulation has been employed for the latter, which includes a cycle-dependent traction-separation relation. Results reveal that GNDs have a strong impact on the failure of notched components. Particularly, the following aspects must be highlighted:

- Large strain gradients in the vicinity of the notch promote local hardening and lead to notch tip stresses that much larger than those predicted by means of conventional plasticity.
- Smaller notches show a very significant gradient-enhanced stress elevation over a micron-scale physical length; as opposed to larger notches, which lead to a larger gradient-dominated region with a lesser stress rise.
- Monotonic crack propagation studies show that GNDs bring a substantial reduction on the ductility and the maximum carrying

capacity.

- Under cyclic loading, gradient effects translate into a noticeable enhancement of fatigue crack growth rates and a premature initiation of cracking.

Non-local strain gradient modeling of notch-induced structural integrity appears therefore indispensable to obtain high fidelity predictions in metallic components.

Acknowledgments

The authors gratefully acknowledge financial support from the Ministry of Economy and Competitiveness of Spain through grant MAT2014-58738-C3. E. Martínez-Pañeda also acknowledges financial support from the People Programme (Marie Curie Actions) of the European Union's Seventh Framework Programme (FP7/2007-2013) under REA grant agreement n° 609405 (COFUNDPostdocDTU). Javier Segurado (UPM, IMDEA Materials) is acknowledged for helpful discussions relative to the control algorithm.

References

- [1] W.D. Nix, H. Gao, Indentation size effects in crystalline materials: a law for strain gradient plasticity, *J. Mech. Phys. Solids* 46 (3) (1998) 411–425.
- [2] J.S. Stölken, A.G. Evans, A microbend test method for measuring the plasticity

- length scale, *Acta Mater.* 46 (1998) 5109–5115.
- [3] N.A. Fleck, G.M. Muller, M.F. Ashby, J.W. Hutchinson, Strain gradient plasticity: theory and experiment, *Acta Metall. Mater.* 42 (2) (1994) 457–487.
- [4] A.G. Evans, J.W. Hutchinson, A critical assessment of theories of strain gradient plasticity, *Acta Mater.* 57 (5) (2009) 1675–1688.
- [5] E. Martínez-Pañeda, C.F. Niordson, L. Bardella, A finite element framework for distortion gradient plasticity with applications to bending of thin foils, *Int. J. Solids Struct.* 96 (2016) 288–299.
- [6] Y. Wei, J.W. Hutchinson, Steady-state crack growth and work of fracture for solids characterized by strain gradient plasticity, *J. Mech. Phys. Solids* 45 (8) (1997) 1253–1273.
- [7] U. Komaragiri, S.R. Agnew, R.P. Gangloff, M. Begley, The role of macroscopic hardening and individual length-scales on crack tip stress elevation from phenomenological strain gradient plasticity, *J. Mech. Phys. Solids* 56 (12) (2008) 3527–3540.
- [8] S. Brinckmann, T. Siegmund, A cohesive zone model based on the micromechanics of dislocations, *Modell. Simul. Materials Sci. Eng.* 16 (2008) 065003 (19pp).
- [9] S. Brinckmann, T. Siegmund, Computations of fatigue crack growth with strain gradient plasticity and an irreversible cohesive zone model, *Eng. Fract. Mech.* 75 (8) (2008) 2276–2294.
- [10] L. Mazzoni-Leduc, T. Pardoen, T.J. Massart, Strain gradient plasticity analysis of transformation induced plasticity in multiphase steels, *Int. J. Solids Struct.* 45 (20) (2008) 5397–5418.
- [11] B.N. Legarth, C.F. Niordson, Debonding failure and size effects in micro-reinforced composites, *Int. J. Plast.* 26 (1) (2010) 149–165.
- [12] E. Martínez-Pañeda, S. del Busto, C.F. Niordson, C. Betegón, Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip, *Int. J. Hydrogen Energy* 41 (2016) 10265–10274.
- [13] E. Martínez-Pañeda, C.F. Niordson, R.P. Gangloff, Strain gradient plasticity-based modeling of hydrogen environment assisted cracking, *Acta Mater.* 117 (2016) 321–332.
- [14] K.L. Nielsen, C.F. Niordson, J.W. Hutchinson, Rolling at small scales, *J. Manuf. Sci. Eng. Trans. ASME* 138 (4) (2016) 1–10.
- [15] H. Song, E. Van der Giessen, X. Liu, Strain gradient plasticity analysis of elastoplastic contact between rough surfaces, *J. Mech. Phys. Solids* 96 (2016) 18–28.
- [16] C.F. Niordson, V. Tvergaard, Size-effects in porous metals, *Modell. Simul. Mater. Sci. Eng.* 15 (1) (2007) S51–S60.
- [17] G.Z. Voyiadjis, R.K. Abu Al-Rub, A finite strain plastic-damage model for high velocity impacts using combined viscosity and gradient localization limiters: Part I – Theoretical formulation, *Int. J. Damage Mech.* 15 (4) (2006) 293–334.
- [18] E.C. Aifantis, first ed., *Internal Length Gradient (ILG) Material Mechanics Across Scales and Disciplines* vol. 49, Elsevier Inc., 2016.
- [19] S.S. Shishvan, M. Ghoddousifar, Fracture analysis in the continuum theory of stress gradient plasticity, *Int. J. Appl. Mech.* 08 (08) (2016) 1650091.
- [20] E. Martínez-Pañeda, S. Natarajan, S. Bordas, Gradient plasticity crack tip characterization by means of the extended finite element method, *Comput. Mech.* 59 (2017) 831–842.
- [21] E. Martínez-Pañeda, C. Betegón, Modeling damage and fracture within strain-gradient plasticity, *Int. J. Solids Struct.* 59 (2015) 208–215.
- [22] E. Martínez-Pañeda, C.F. Niordson, On fracture in finite strain gradient plasticity, *Int. J. Plast.* 80 (2016) 154–167.
- [23] M.R. Ayatollahi, A.R. Torabi, A.S. Rahimi, Brittle fracture assessment of engineering components in the presence of notches: a review, *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.* 39 (3) (2016) 267–291.
- [24] F.J. Gómez, M. Elices, A fracture criterion for sharp V-notched samples, *Int. J. Fract.* 123 (3–4) (2003) 163–175.
- [25] F.J. Gómez, M. Elices, A fracture criterion for blunted V-notched samples, *Int. J. Fract.* 127 (3) (2004) 239–264.
- [26] F.J. Gomez, G.V. Guinea, M. Elices, Failure criteria for linear elastic materials with U-notches, *Int. J. Fract.* 141 (1–2) (2006) 99–113.
- [27] V. Olden, C. Thaulow, R. Johnsen, E. Østby, Cohesive zone modeling of hydrogen-induced stress cracking in 25% Cr duplex stainless steel, *Scripta Mater.* 57 (7) (2007) 615–618.
- [28] D.A. Cendón, A.R. Torabi, M. Elices, Fracture assessment of graphite V-notched and U-notched specimens by using the cohesive crack model, *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.* 38 (5) (2015) 563–573.
- [29] J.M. Sancho, J. Planas, D.A. Cendón, E. Reyes, J.C. Gálvez, An embedded crack model for finite element analysis of concrete fracture, *Eng. Fract. Mech.* 74 (1–2) (2007) 75–86.
- [30] F. Berto, P. Lazzarin, A review of the volume-based strain energy density approach applied to V-notches and welded structures, *Theoret. Appl. Fract. Mech.* 52 (3) (2009) 183–194.
- [31] F. Berto, P. Lazzarin, Recent developments in brittle and quasi-brittle failure assessment of engineering materials by means of local approaches, *Mater. Sci. Eng. R: Rep.* 75 (1) (2014) 1–48.
- [32] H. Gao, Y. Huang, W.D. Nix, J.W. Hutchinson, Mechanism-based strain gradient plasticity: I. Theory, *J. Mech. Phys. Solids* 47 (1999) 128–152.
- [33] Y. Huang, S. Qu, K. Hwang, M. Li, H. Gao, A conventional theory of mechanism-based strain gradient plasticity, *Int. J. Plast.* 20 (4–5) (2004) 753–782.
- [34] N.A. Fleck, J.W. Hutchinson, A reformulation of strain gradient plasticity, *J. Mech. Phys. Solids* 49 (10) (2001) 2245–2271.
- [35] P. Gudmundson, A unified treatment of strain gradient plasticity, *J. Mech. Phys. Solids* 52 (6) (2004) 1379–1406.
- [36] Y. Huang, H. Gao, W.D. Nix, J.W. Hutchinson, Mechanism-based strain gradient plasticity – II. Analysis, *J. Mech. Phys. Solids* 48 (2000) 99–128.
- [37] G.I. Taylor, Plastic strain in metals, *J. Inst. Met.* 62 (1938) 307–324.
- [38] N.A. Fleck, J.W. Hutchinson, Strain gradient plasticity, *Adv. Appl. Mech.* 33 (1997) 295–362.
- [39] K.C. Hwang, H. Jiang, Y. Huang, H. Gao, Finite deformation analysis of mechanism-based strain gradient plasticity: torsion and crack tip field, *Int. J. Plast.* 19 (2) (2003) 235–251.
- [40] S. Qu, Y. Huang, H. Jiang, C. Liu, Fracture analysis in the conventional theory of mechanism-based strain gradient (CMSG) plasticity, *Int. J. Fract.* 129 (3) (2004) 199–220.
- [41] T.J.R. Hughes, J. Winget, Finite rotation effects in numerical integration of rate constitutive equations arising in large-deformation analysis, *Int. J. Numer. Meth. Eng.* 15 (12) (1980) 1862–1867.
- [42] M. Shi, Y. Huang, H. Jiang, K.C. Hwang, M. Li, The boundary-layer effect on the crack tip field in mechanism-based strain gradient plasticity, *Int. J. Fract.* 112 (1) (2001) 23–41.
- [43] S. del Busto, C. Betegón, E. Martínez-Pañeda, A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue, *Eng. Fract. Mech.* (in press). <http://dx.doi.org/10.1016/j.engfracmech.2017.05.021>.
- [44] X.P. Xu, A. Needleman, Void nucleation by inclusion debonding in a crystal matrix, *Modell. Simul. Mater. Sci. Eng.* 1 (2) (1999) 111–132.
- [45] K. Roe, T. Siegmund, An irreversible cohesive zone model for interface fatigue crack growth simulation, *Eng. Fract. Mech.* 70 (2) (2003) 209–232.
- [46] V. Tvergaard, Effect of thickness inhomogeneities in internally pressurized elastic-plastic spherical shells, *J. Mech. Phys. Solids* 24 (5) (1976) 291–304.
- [47] J. Segurado, J. Llorca, A new three-dimensional interface finite element to simulate fracture in composites, *Int. J. Solids Struct.* 41 (11–12) (2004) 2977–2993.
- [48] E. Martínez-Pañeda, V.S. Deshpande, C.F. Niordson, N.A. Fleck, Crack growth resistance in metals (submitted for publication).
- [49] Y.F. Gao, A.F. Bower, A simple technique for avoiding convergence problems in finite element simulations of crack nucleation and growth on cohesive interfaces, *Modell. Simul. Mater. Sci. Eng.* 12 (3) (2004) 453–463.
- [50] G. Papazafeiropoulos, M. Muñoz-Calvente, E. Martínez-Pañeda, Abaqus2Matlab: a suitable tool for finite element post-processing, *Adv. Eng. Softw.* 105 (2017) 9–16.

Susana del Busto González curso estudios de Ingeniería Técnica Industrial en la especialidad de electrónica en la Universidad de Oviedo. Posteriormente obtuvo el título de graduado en Ingeniería Eléctrica en el 2012 expedido por la Universidad de Oviedo, obteniendo el reconocimiento por su trabajo fin de grado por iniciativa empresarial otorgado por la empresa García Rama en el ámbito de la innovación en la edificación bajo la supervisión de Prof. Herminio Sastre (Universidad de Oviedo). Continuo sus estudios en otro ámbito de la ingeniería cursando el Máster Interuniversitario en Integridad y Durabilidad de Materiales Componentes y Estructuras impartido conjuntamente por la Universidad de Oviedo, La Universidad de Cantabria y la Universidad de Burgos durante el curso académico 2013-2014. Realizó el trabajo fin de master en el ámbito de la investigación, bajo la supervisión de los profesores del máster Covadonga Betegón y Emilio Martínez Pañeda, obteniendo el reconocimiento del segundo premio otorgado por la Cátedra de Movilidad de la Universidad de Oviedo patrocinada por Thyssen Krupp, por la aportación de nuevos conceptos de estructuras ligeras basados en los modelos de fisura cohesiva. Inmediatamente después de acabar el master, comenzó sus estudios de doctorado en la Universidad de Oviedo dentro del Programa Oficial de Doctorado de Materiales bajo la supervisión de Prof. Covadonga Betegón (Universidad de Oviedo) y Dr. Emilio Martínez Pañeda (Universidad de Cambridge), desarrollando su trabajo investigador enfocado al estudio de modelos numéricos predictivos capaces de predecir la fragilización por hidrógeno mediante modelos de fisura cohesiva, dentro del grupo de investigación multidisciplinar e interdepartamental SIMUMECAMAT. Durante el transcurso de sus estudios de doctorado, ha complementado el trabajo investigador con la experiencia profesional en el ámbito educativo como profesora de enseñanza secundaria en la especialidad de Tecnología. La investigación desarrollada durante la tesis doctoral ha sido divulgada mediante la

publicación en revistas indexadas en el Journal Citation Report y presentaciones orales en congresos que se relacionan a continuación:

PUBLICACIONES

- E. Martínez-Pañeda, S. del Busto, C. F. Niordson, and C. Betegón, “Strain gradient plasticity modeling of hydrogen diffusion to the crack tip,” *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 41, pp. 10265–10274, 2016.
- S. del Busto, C. Betegón, and E. Martínez-Pañeda, “A cohesive zone framework for environmentally assisted fatigue,” *Eng. Fract. Mech.*, vol. 185, pp. 210–226, 2017.
- Martínez-Pañeda, S. del Busto, and C. Betegón, “Non-local plasticity effects on notch fracture mechanics,” *Theor. Appl. Fract. Mech.*, vol. 92, pp. 276–287, 2017.

CONGRESOS INTERNACIONALES

- S. del Busto, C. Betegón, E. Martínez-Pañeda. Mechanistic-based modeling of fatigue in notched specimens. International Symposium on Notch Fracture. Santander (España). Marzo 2017.
- S. del Busto, E. Martínez-Pañeda, C. Betegón. Computations of hydrogen assisted fatigue crack growth with strain gradient plasticity. XVIII International Colloquium MECHANICAL FATIGUE OF METALS. Gijón (España). Septiembre 2016.

CONGRESOS NACIONALES

- S. del Busto, E. Martínez-Pañeda, C. F. Niordson, C. Betegón. Hydrogen diffusion ahead of crack tip: the role of strain gradients. XIV Congreso Nacional de Materiales. Gijón (España). Junio 2016.

