

Lien entre microstructure et contrainte critique de clivage à -196°C des aciers 4140

F. Tioguem^{ab}, M. Mazière^a, M. Sennour^a, A. Galtier^b, A-F. Gourgues-Lorenzon^a

a. MINES ParisTech – PSL Research University – Centre des Matériaux, UMR CNRS 7633, BP 87 – 91003 EVRY CEDEX, France.

b. Ascometal France Holding – Centre de Recherche CREAS, BP 70045 avenue de France, 57301 HAGONDANGE, France.

Mots clés : aciers ; martensite ; bainite ; carbures ; contrainte critique de clivage.

Résumé

Cette étude porte sur la rupture par clivage des aciers trempés-revenus de type 4140 utilisés pour la fabrication des pièces de forage off-shore. Six microstructures ont été préparées en faisant varier la zone de prélèvement sur la barre puis, grâce à différents traitements de revenu, l'état de précipitation des carbures et le niveau de restauration de la martensite. A la suite d'essais à -196°C sur éprouvettes lisses et entaillées, les contraintes critiques de clivage ont été déterminées en combinant les résultats expérimentaux et le calcul par éléments finis. Les résultats éclairent le lien microstructure – propriétés à rupture par clivage des aciers 4140. Les entités microstructurales responsables de l'amorçage du clivage dans les microstructures étudiées sont les paquets de bainite supérieure et les carbures de cémentite M_3C . Un lien quantitatif a été établi entre taille de carbures et contrainte critique de clivage pour les microstructures martensitiques, où seuls les 2% de carbures les plus grossiers sont responsables du déclenchement du clivage.

1. Introduction

Les aciers de type 4140 trempés – revenus de microstructure martensite + bainite sont largement utilisés pour la fabrication des pièces de forage *off-shore*. Une fois en service, ces pièces sont soumises à des sollicitations mécaniques sévères qui demandent une bonne combinaison entre résistance et ductilité. L'optimisation des performances à rupture de ces nuances nécessite le développement de modèles prédictifs de la rupture basés sur la microstructure, ce qui impose une compréhension profonde des entités microstructurales qui pilotent la rupture fragile par clivage.

De nombreuses études ont été menées sur le lien microstructure – contrainte de clivage des aciers, notamment pour appareils sous pression notamment. Comparées aux aciers bainitiques, les nuances martensitiques à 0.2C – 3Ni – 1.79Cr – 0.54Mo présentent une résistance au clivage plus importante du fait de la finesse des entités microstructurales [1]. Sur deux aciers bainitiques A508, les meilleures résistances au clivage à -196°C et -160°C sont obtenues pour la microstructure ayant la plus petite taille de grain austénitique et des carbures plus fins [2]. Cependant, très peu d'études sur les nuances de type 4140 rapportent le lien microstructure - propriétés mécaniques à -196°C.

Cette étude porte sur la rupture fragile des aciers 4140. On propose une approche simple basée sur le modèle de Smith [3] pour établir un lien quantitatif entre entités microstructurales et résistance au clivage. On verra notamment que la taille des carbures est un paramètre fondamental pour prédire la contrainte critique de clivage.

2. Procédure expérimentale

2.1 Matériau

Une barre d'acier 4140 de rayon 90mm, trempée revenue, a été utilisée dans cette étude. La composition chimique (% massiques) est 0.40C – 1.25Cr – 0.32Mo – 1.14Mn – 0.27Si – 0.20Ni – 0.02Al. A l'état de réception, la limite d'élasticité est proche de 130ksi (Rp0.2 ~900 MPa). Afin de disposer du

même taux moyen de carbone (0,40%) sur les microstructures étudiées, des ébauches ont été prélevées à 25mm et à 55mm de la peau de la barre ; on les désigne respectivement par P et M. Certaines de ces ébauches ont subi un revenu additionnel (**Table 1**) afin de conserver le même état de référence (notamment la même austénite mère) tout en variant l'état de précipitation. Ces traitements ont conduit aux niveaux de résistance 110ksi (~758 MPa) et 90ksi (~620 MPa).

2.2 Essais mécaniques

Des essais de résilience Charpy ISO-V ont permis de déterminer l'énergie à rupture sur le plateau fragile. Ils ont été réalisés sur un mouton pendule de 300J à une vitesse de $5\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ selon la norme ISO148-1:2017. Des essais de traction ont été réalisés dans le sens long de la barre, à -196°C , dans un bain d'azote liquide, sur une machine servo-hydraulique MTS dotée d'une cellule de force de 100kN. Deux géométries d'éprouvettes axisymétriques ont été utilisées : des éprouvettes lisses (AL), pour déterminer le comportement élastoplastique et des éprouvettes entaillées (AE) pour la détermination des contraintes critiques de clivage. Un extensomètre axial de longueur de jauge $l_o = 18\text{mm}$ a été utilisé pour les éprouvettes AL. Deux extensomètres ont été utilisés pour les mesures de l'ouverture d'entaille ($l_o = 10\text{mm}$) et la réduction du diamètre en fond d'entaille des éprouvettes AE.

Microstructure	Traitements thermiques	Rp0.2 (MPa)	Rm (MPa)	A%
130P	Austénitisation $875^\circ\text{C} - 25\text{min}$ + trempe à l'eau	907 ± 10	1050 ± 7	16 ± 0
130M	Revenu $600^\circ\text{C} - 3\text{h}$ + refroidissement à l'air (sur barre)	756 ± 3	937 ± 2	17 ± 1
110P	130P + Revenu $690^\circ\text{C} - 1\text{h}$ (sur ébauches)	678 ± 47	835 ± 28	21 ± 1
110M	130M + Revenu $665^\circ\text{C} - 1\text{h}$ (sur ébauches)	687 ± 22	865 ± 15	19 ± 1
90P	130P + Revenu $720^\circ\text{C} - 4\text{h}$ (sur ébauches)	590 ± 2	748 ± 8	20 ± 2
90M	130M + Revenu $720^\circ\text{C} - 4\text{h}$ (sur ébauches)	547 ± 2	732 ± 1	23 ± 2

Table 1. Cycles thermiques et propriétés mécaniques en traction simple (à l'ambiante) et écarts types sur 3 mesures des six microstructures issues des configurations 130ksi, 110ksi et 90ksi.

2.3 Observations

La structure en lattes de la matrice a été observée sur lames minces (préparées par amincissement électrolytique) au microscope électronique à balayage (MEB) à émission de champ Zeiss Sigma300 et au microscope électronique en transmission (MET) FEI Tecnai F20-ST. Les carbures ont été caractérisés sur répliques extractives dont la préparation est détaillée dans [4]. Les répliques ont été observées en mode électrons rétrodiffusés avec une tension d'accélération de 5kV et un grandissement de 10^4 fois. Des images de 1024×768 pixels ont été utilisées pour mesurer la taille des carbures au moyen du logiciel ImageJ. Plus de 2000 carbures ont été considérés par microstructure. Les faciès de rupture ont été observés en mode électrons secondaires en insistant sur le foyer d'amorçage du clivage.

3. Résultats

3.1 Microstructures et entités microstructurales

La **Fig.1** présente la microstructure des six échantillons. Les microstructures du prélèvement P (130P, 110P et 90P) sont majoritairement martensitiques, avec environ 6% de bainite inférieure. Les microstructures M (130M, 110M, 90M) contiennent de la martensite et 15% de bainite supérieure. La bainite inférieure est sous forme de lattes (**Fig.1.b**), alors que la bainite supérieure est plus grossière (**Fig.1.e**). Les carbures inter-lattes et intralattes sont dispersés dans la martensite des configurations

130ksi et 110ksi, tandis que dans la configuration 90ksi, des carbures grossiers sont majoritairement aux joints de lattes. Les carbures observés sont tous de la cémentite M_3C .

La taille moyenne des carbures de la martensite augmente avec la température de revenu (**Table 2**) ; elle reste similaire entre les deux microstructures de la même configuration de revenu. Les carbures de la bainite supérieure sont en faible quantité et plus grossiers (**Fig.1.e**) ce qui est cohérent avec sa dureté inférieure à celle de la martensite [5]. Augmenter la température de revenu a conduit à une dissolution des carbures intralattes et à la croissance des carbures inter-lattes, comme reporté par Im et al. [6] sur des aciers bainitiques. La largeur des lattes de martensite augmente sensiblement avec la température de revenu (**Fig. 1.a-c et e-g, Table 2**). En accord avec les cartographies EBSD (**Fig. 2**), les désorientations internes diminuent et les lattes sont plus larges pour les revenus les plus poussés, suggérant l'élimination de joints de lattes faiblement désorientés. En effet, des alignements de carbures en l'absence de joint ont été observés par endroits, dans la configuration 90ksi notamment (**Fig.1.h**).

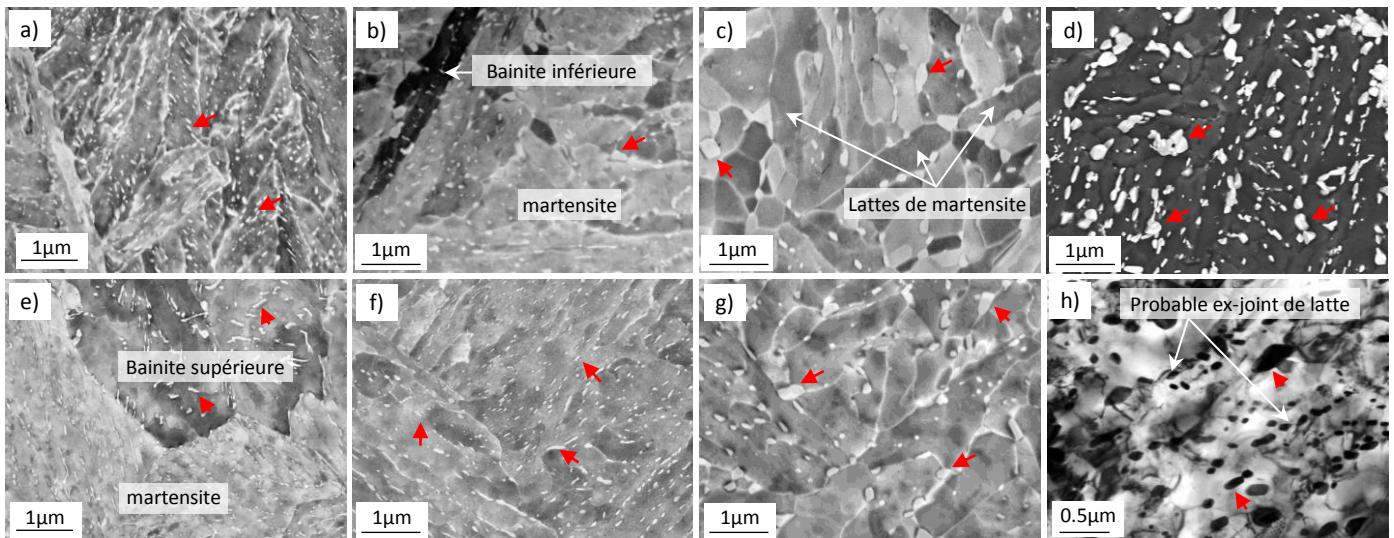


Figure 1. Microstructure au MEB-FEG des échantillons : a) 130P, b) 110P, c) 90P, e) 130M, f) 110M, g) 90M. d) Réplique au carbone du 90P. h) Microstructure au MET du 90M. Les flèches rouges indiquent des carbures.

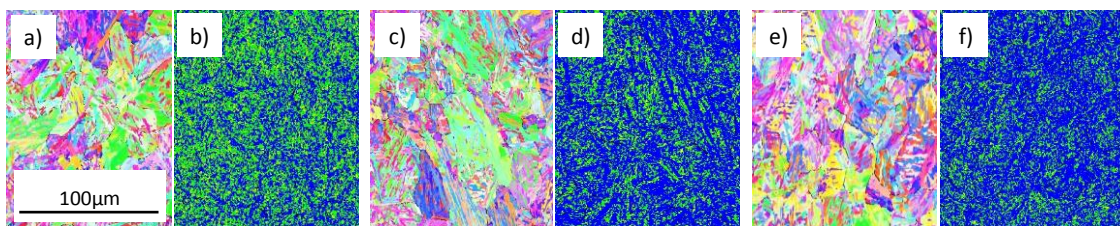


Figure 2. Cartographies EBSD en figure de pôles inverse (a,c,e) et en désorientation locale (KAM : grains bleus $<1^\circ$, grains verts $1-2^\circ$) (b,d,f) pour les microstructures a-b) 130P, c-d) 110P, e-f) 90P

Entités microstructurales	130ksi		110ksi		90ksi	
	130P	130M	110P	110M	90P	90M
Taille moyenne des carbures (nm)	87	86	104	94	143	139
Largeur des lattes (μm)	0.17	0.25	0.38	0.30	0.40	0.47

Table 2. Taille moyenne des entités microstructurales pour chacune des microstructures.

3.2 Comportement mécanique

On reporte dans la **Table 3** les propriétés mécaniques à -196°C des microstructures étudiées. Le rapport $R_{p0.2}/R_m$ reste proche de 0.9, suggérant que le revenu n'a pas eu d'effet sur l'écroutissage sauf

en tout début de déformation. L'énergie à rupture Charpy est proche de 10J et 5J respectivement pour les éprouvettes P et M ; ce qui suggère que les microstructures martensitiques P résistent mieux à la rupture par clivage comparé aux microstructures martensite + bainite (M).

Microstructure	$R_{p0,2}$ (MPa)	R_m (MPa)	$R_{p0,2}/R_m$	A (%)	Z (%)	K_V (J)	Mode de rupture Charpy
130P	1420 ± 3	1510 ± 8	0.94	16 ± 0	37 ± 3	12 ± 1	clivage
130M	1260 ± 5	1330 ± 38	0.94	11 ± 1	34 ± 2	5 ± 1	clivage
110P	1237 ± 3	1330 ± 21	0.93	18 ± 1	45 ± 5	12 ± 4	clivage
110M	1170 ± 2	1300 ± 9	0.90	18 ± 1	44 ± 2	6 ± 1	clivage
90P	1130 ± 14	1205 ± 9	0.93	21 ± 2	41 ± 5	10 ± 3	clivage
90M	1088 ± 13	1198 ± 13	0.90	20 ± 1	40 ± 3	4 ± 1	clivage

Table 3. Propriétés mécaniques et écarts types sur 3 essais (traction lisse et résilience Charpy) à -196°C.

La Fig.3 présente le comportement à rupture macroscopique sur éprouvette AE. En corrélation avec le comportement élastoplastique, la hiérarchie des niveaux de résistance se confirme. Globalement, les éprouvettes des microstructures M cassent plus tôt que les P. En particulier, le 110P semble plus se déformer avant de rompre comparé aux autres microstructures. En revanche, les microstructures 90P et 90M présentent un comportement à rupture similaire.

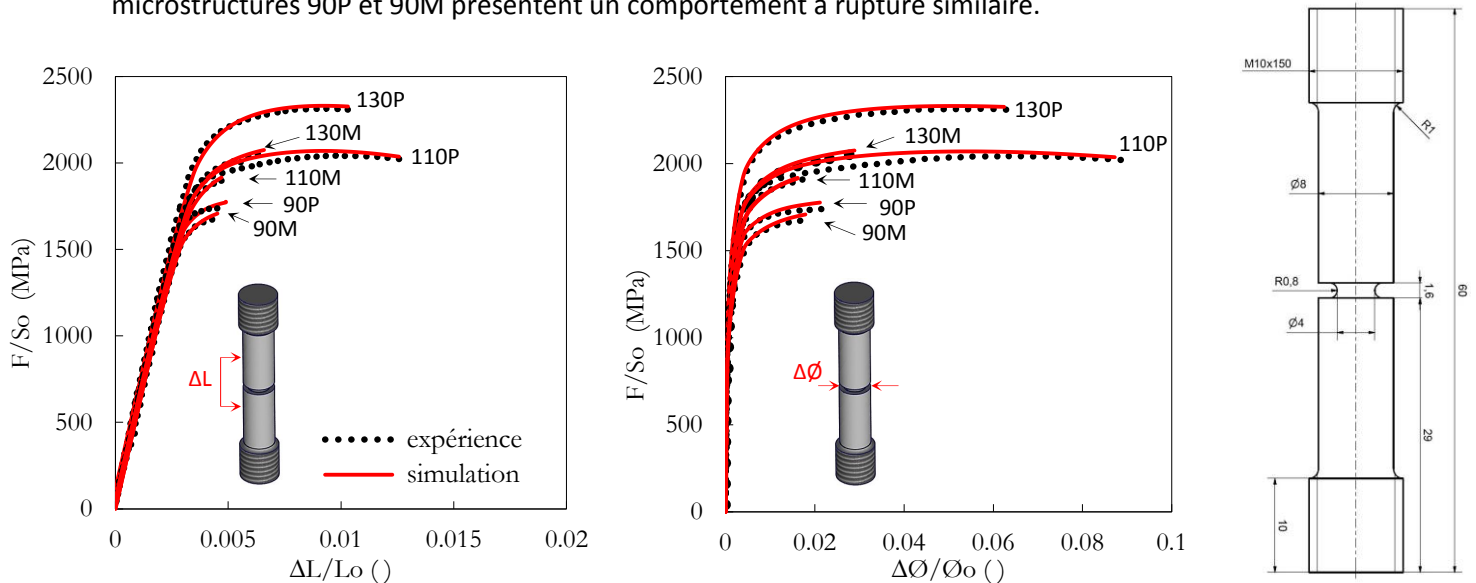


Figure 3. Courbes expérimentales et prédiction numérique du comportement à -196°C sur AE.

3.3 Mécanismes de rupture des éprouvettes axisymétriques entaillées

Les mécanismes de rupture sur AE, étant représentatifs de ceux observés sur les surfaces de rupture des éprouvettes Charpy, ils seront seuls présentés ici. La Fig. 3 présente les mécanismes de rupture par clivage observés au niveau du foyer d'amorçage. Certains sites d'amorçage, encadrés par des tirets jaunes, ont été agrandis en inserts. Pour les aciers bas-carbone trempés-revenus, Il est connu que le clivage se propage suivant des plans {100} et que les joints de blocs sont des barrières à sa propagation [7]. Pour le 130P (Fig. 4.a), l'amorçage se produit vraisemblablement par décohésion d'un joint de grains. Cette zone est riche en carbures et en cavités (ex-logement des carbures M_3C). Le foyer d'amorçage du 110P (Fig. 4.b) présente une facette de clivage de taille $\sim 1\mu m$. Cette facette est entourée de quelques ligaments ductiles isolés et de cupules contenant des carbures. Ces ligaments expliquent probablement le niveau élevé de déformation plastique avant rupture du 110P. Le faciès du 90P (Fig. 4.c) montre des facettes de clivage allongées de largeur proche de $1\mu m$ soit environ quatre fois la largeur moyenne des lattes de martensite. Les foyers d'amorçage des microstructures 130M (Fig. 4.d),

110M (Fig. 4.e) et 90M (Fig. 4.f) présentent des facettes grossières de taille $\sim 10\mu\text{m}$, qui laissent penser au clivage des paquets de bainite et suggèrent que ceux-ci sont à l'origine de la rupture prématurée des microstructures M.

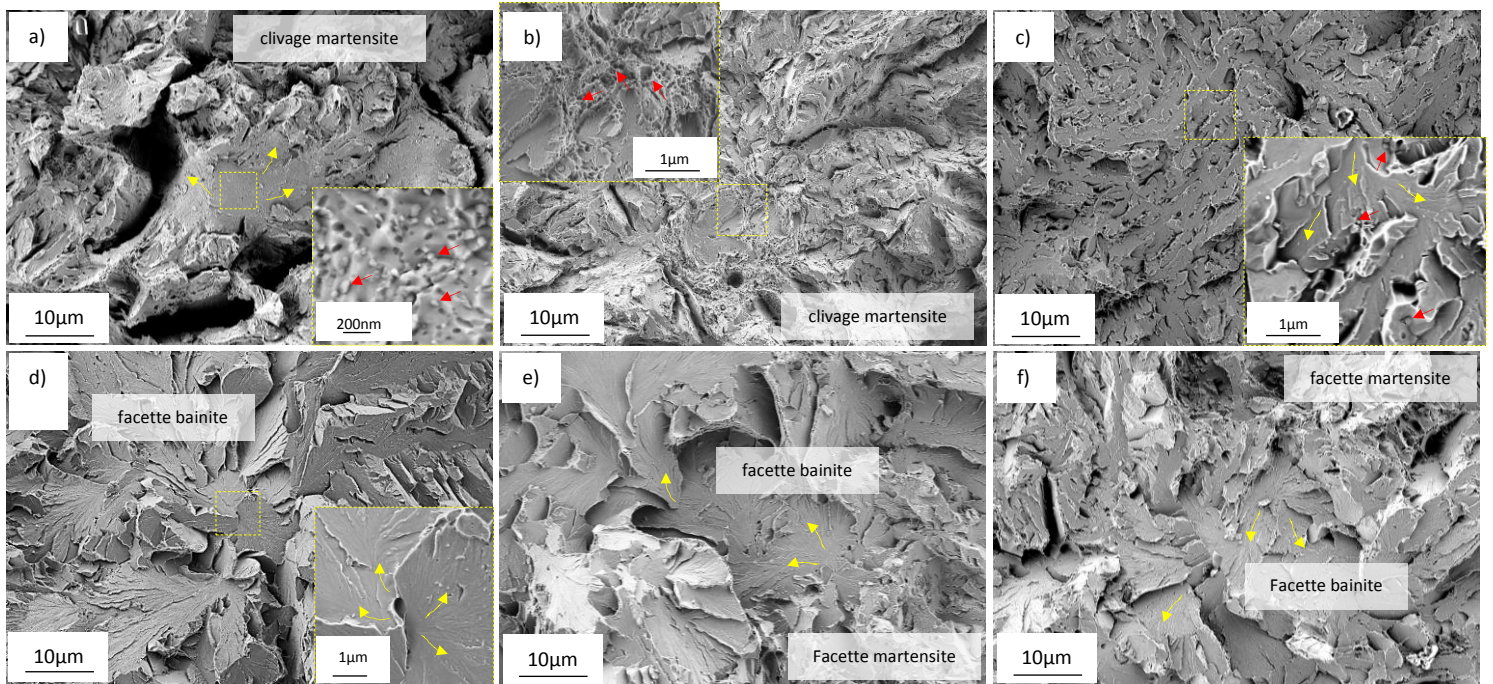


Figure 4. Mécanismes de rupture microscopiques au foyer d'amorçage du clivage pour les microstructures : a) 130P, b) 110P, c) 90P, d) 130M, e) 110M et f) 90M. Les flèches rouges et jaunes indiquent respectivement les carbures de cémentites et la propagation du clivage à partir du foyer d'amorçage.

3.4 Analyse mécanique des essais de traction

L'analyse mécanique des essais a été réalisée sur le logiciel de calcul par éléments finis Zset®. Les détails de la mise en donnée sont fournis dans [8]. Une identification de la loi de comportement a été réalisée en s'appuyant sur les données expérimentales des essais de traction sur AL à -196°C . L'écoulement plastique a été décrit par une surface de charge (Eq.1), avec une contrainte équivalente de Hosford (Eq.2) et une loi d'écrouissage isotrope non-linéaire de type Voce (Eq.3).

$$f(\sigma, p) = \sigma_H - R(p) \quad (1)$$

$$\sigma_H = \left(\frac{(\sigma_1 - \sigma_2)^n + (\sigma_2 - \sigma_3)^n + (\sigma_1 - \sigma_3)^n}{2} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (2)$$

$$R(p) = R_0 + \sum_{i=1}^3 Q_i (1 - e^{-b_i p}) \quad (3)$$

Dans (Eq.2), $\sigma_1 > \sigma_2 > \sigma_3$ sont les contraintes principales du tenseur des contraintes, σ . R_0, Q_i, n, b_i sont des paramètres matériau à optimiser. Le module d'Young (E) et le coefficient de Poisson (ν) sont respectivement de 200GPa et 0.3. Le paramètre n de Hosford, préalablement identifié sur des essais de traction en déformation plane à l'ambiante pour les mêmes microstructures [4], est fixé à 7. Les paramètres matériau optimisés de la Table 3 ont été utilisés pour le calcul numérique des essais sur AE. La Fig. 5a présente la mise en donnée des essais sur éprouvette AE. Un maillage régulier avec des éléments quadratiques à intégration réduite a été utilisé. Une étude de convergence du maillage nous a conduit à choisir les éléments de taille $b = 30\mu\text{m}$ et $h = 50\mu\text{m}$. Un déplacement uniforme a été imposé sur le plan P_2 . On peut voir sur la Fig. 3 que la prédiction des courbes obtenues sur AE est satisfaisante.

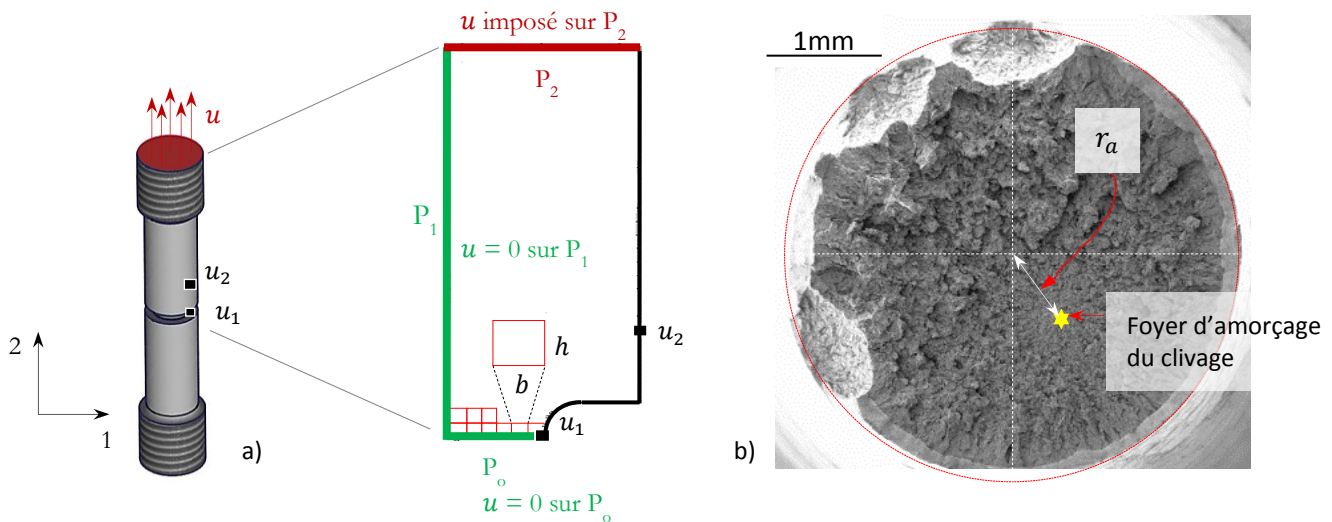


Figure 5. a) Mise en données pour le calcul numérique des AE et b) Méthode d'identification du site d'amorçage du clivage sur les faciès de rupture des AE : cas de l'éprouvette 110P N°2.

La Fig. 6 présente le champ de contrainte axiale à l'instant de rupture macroscopique (ouverture d'entaille maximale à rupture) pour chaque éprouvette de trois des six configurations étudiées. La contrainte critique de clivage est relevée au point de Gauss de l'élément dont la distance du centre de l'éprouvette au site d'amorçage de l'éprouvette déformée, r_a , correspond à celle mesurée sur les faciès de rupture des AE (Fig. 5b).

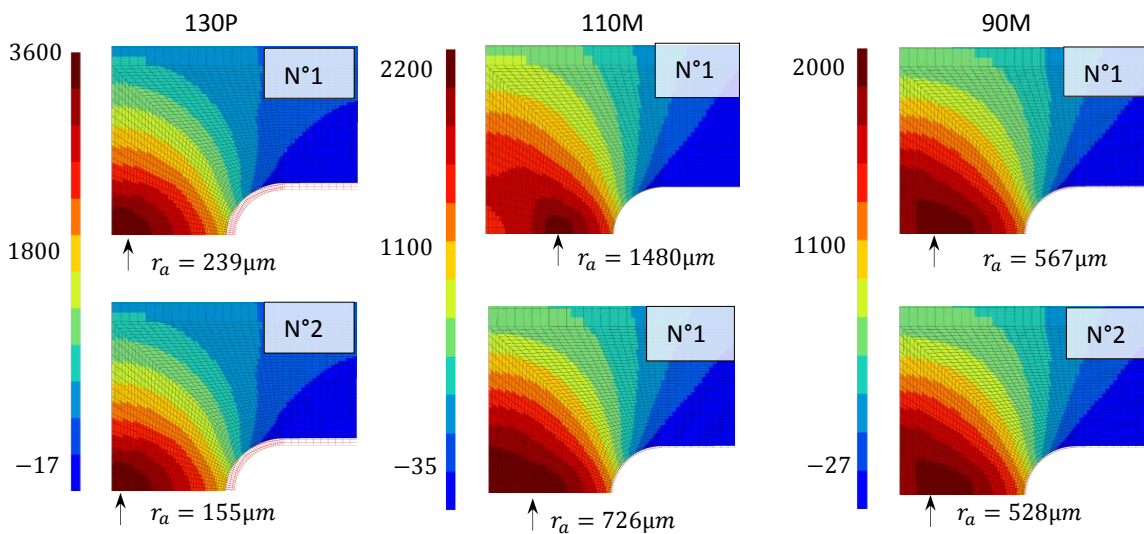


Figure 6. Cartographie de la contrainte axiale σ_{22} à l'instant de rupture macroscopique pour les éprouvettes AE. Seul le cas des microstructures 130P, 110M et 90M est présenté.

Microstructure	R_o (MPa)	Q_1 (MPa)	b_1	Q_2 (MPa)	b_2	Q_3 (MPa)	b_3	σ_c (MPa)
130P	1415	-6	240	607	5	97	0.2	3271 ±4
130M	1360	-51	118	523	8	227	0.2	2710 ±6
110P	1037	-70	93	518	7	4	0.1	3022 ±91
110M	859	-88	123	513	9	206	0.2	2084 ±270
90P	1173	-124	172	726	4	51	0.2	2296 ±47
90M	732	-124	152	450	10	168	0.2	2049 ±110

Table 3. Paramètres optimisés et contraintes critiques de clivage pour chacune des microstructures.

La **Table 3** récapitule les valeurs de contraintes de clivage obtenues. La dispersion correspond à l'écart type entre les 2 valeurs de contrainte obtenues. Pour une même configuration de revenu, les dispersions sont plus élevées pour les microstructures M, sans doute du fait de la distribution spatiale des paquets de bainite supérieure. Le clivage des éprouvettes N°1 du 110M, N°1 et N°2 du 90M s'est produit avant la redistribution complète des contraintes.

4. Discussion

4.1 Microstructure et propriétés mécaniques

A -196°C , les microstructures P restent plus dures que les M, du fait des paquets de bainite supérieure dans les M [9]. La baisse du niveau de résistance avec l'augmentation de la température de revenu s'explique d'une part, par l'augmentation de la taille des entités microstructurales (taille des carbures, la largeur des lattes de martensite) [10], d'autre part avec le niveau de restauration des dislocations dans la martensite. Au vu du comportement mécanique similaire entre les microstructures 90P et 90M, le revenu à 720°C pendant 4h a effacé le contraste mécanique entre la bainite et martensite, via une restauration des dislocations et un grossissement des carbures de la martensite (comparer la bainite de la **Fig. 1e** et la martensite de la **Fig. 1g**).

4.2 Microstructure et contrainte de clivage

Le lien entre microstructure et contrainte de clivage peut être présenté par le modèle de Smith [3] donné par l'expression $\sigma_c = \sqrt{\frac{2E\gamma_p}{\pi c_o(1-\nu^2)}}$ où c_o et γ_p désignent respectivement une taille caractéristique de carbures et l'énergie effective de création de surface. C'est une approche de type Griffith développée pour les aciers bas-carbone, qui suppose que la rupture est contrôlée par la première propagation d'une fissure d'un carbure dans la matrice.

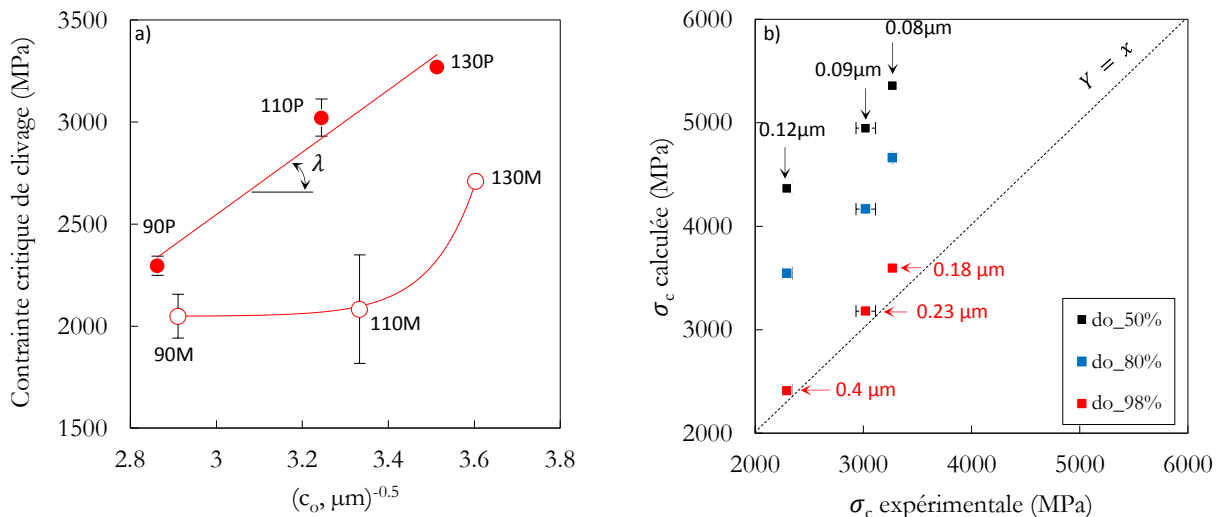


Figure 7. a) Evolution de la contrainte critique de clivage avec la taille moyenne des carbures, b) Comparaison entre contrainte critique de clivage mesurée à partir des essais avec celle calculée à partir du modèle de Smith à partir des différentes tailles caractéristiques des carbures de la martensite (percentiles de la distribution) pour les microstructures P.

Plus la taille caractéristique des carbures est fine, plus la contrainte critique de clivage est élevée (**Fig. 7a**). Des résultats similaires ont été publiés sur des aciers ferritiques [11] puis sur des aciers bainitiques [12]. Les microstructures 130P, 110P et 90P montrent une dépendance linéaire de la

contrainte de clivage envers la taille des carbures. De fait, ces microstructures, de martensite + bainite inférieure semblent plus homogènes en termes de microtexture et de distribution de carbures que celles contenant de la bainite supérieure.

Au moyen de l'expression $\sigma_c = \lambda \sqrt{\frac{1}{d_0}}$ on peut estimer une énergie effective de création de surface dans la martensite proche de 17 J.m⁻². Curry et Knott [11] ont proposé 14 J.m⁻² pour les aciers ferritiques. Pour les microstructures P, on propose sur la **Fig. 7.b** une prédiction de la contrainte de clivage à partir de différents percentiles de la distribution de taille des carbures. La meilleure prédiction est obtenue en ne retenant que les 2% les plus grossiers. Ces résultats suggèrent que l'étape critique gouvernant la rupture a été le déclenchement du clivage au voisinage des carbures grossiers des microstructures 130P, 110P et 90P. Aucune tendance claire n'a été dégagée pour les microstructures 130M, 110M et 90M, dont la rupture à -196°C semble contrôlée par la bainite supérieure.

5. Conclusions

Dans cette étude, nous avons dégagé les entités microstructurales responsables du déclenchement du clivage dans les aciers de microstructures martensitiques et martensite + bainite supérieure. Les conclusions majeures sont : a) Les 2% des carbures grossiers sont les entités microstructurales responsables de l'amorçage du clivage dans les microstructures martensites (type P). b) Les paquets de bainite sont à l'origine de la rupture par clivage prématurée des microstructures de type martensite – bainite (type M). c) La valeur de 17 J.m⁻² pour l'énergie effective de création de surface dans les nuances martensitique de type 4140 permet une meilleure prédiction de la contrainte critique de clivage.

Remerciements

Les auteurs remercient l'ANRT pour le financement de la thèse sous convention CIFRE n°2016/070.

Références

- [1] K.-H. Lee, S.-G. Park, M.-C. Kim, B.-S. Lee, Cleavage fracture toughness of tempered martensitic Ni–Cr–Mo low alloy steel with different martensite fraction. *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 534, p. 75-82, 2012.
- [2] S. Wu, H. Jin, Y. Sun, L. Cao, Critical cleavage fracture stress characterization of A508 nuclear pressure vessel steels. *Int. J. Press. Vessels Pip.*, vol. 123-124, p. 92-98, 2014.
- [3] E. Smith, The formation of a cleavage crack in a crystalline solid—I. *Acta Metall.*, vol. 14, n° 8, p. 985-989, août 1966.
- [4] F. Tioguem, M. Maziere, A-F. Gourgues-Lorenzon, A. Galtier, F. Tankoua, Identification of ductile to brittle transition temperature by using plane strain specimen in tensile test and correlation with instrumented Charpy impact test: experimental and numerical study. *Mechanics & Industry*, 2018.
- [5] H. K. D. H. Bhadeshia, *Bainite in steels : transformations, microstructure and properties*, 2nd ed. London : IOM Communications, 2001.
- [6] Y.-R. Im, Y. Jun Oh, B.-J. Lee, J. Hwa Hong, H.-C. Lee, Effects of carbide precipitation on the strength and Charpy impact properties of low carbon Mn–Ni–Mo bainitic steels. *J. Nucl. Mater.*, vol. 297, n° 2, p. 138-148, 2001.
- [7] M. Tsuboi, A. Shibata, D. Terada, N. Tsuji, Role of Different Kinds of Boundaries Against Cleavage Crack Propagation in Low-Temperature Embrittlement of Low-Carbon Martensitic Steel, *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 48, n° 7, p. 3261-3268, 2017.
- [8] J. Lorthios, M. Mazière, X. Lemoine, P. Cugy, J. Besson, A.-F. Gourgues-Lorenzon, Fracture behavior of a Fe–22Mn–0.6C–0.2V austenitic TWIP steel. *Int. J. Mech. Sci.*, vol. 101, n° Supplement C, p. 99-113, 2015.
- [9] Y. Tomita, K. Okabayashi, Mechanical properties of 0.40 pct C-Ni-Cr-Mo high strength steel having a mixed structure of martensite and bainite. *Metall. Trans. A*, vol. 16, n° 1, p. 73-82.
- [10] D. A. Curry et P. L. Pratt, The Role of Second Phase Particles in the Ductile Fracture of Higher Carbon Steels. *Materials Science and Engineering*, p. 223-235, 1979.
- [11] D. A. Curry, J. F. Knott, Effects of microstructure on cleavage fracture stress in steel. *Met. Sci.*, vol. 12, n° 11, p. 511-514, 1978.
- [12] W.-J. Yang, B.-S. Lee, Y. Jun Oh, M.-Y. Huh, J.-H. Hong, Microstructural parameters governing cleavage fracture behaviors in the ductile–brittle transition region in reactor pressure vessel steels. *Materials Science and Engineering A* 379(1) 17-26, 2004.