AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Ecole doctorale EMMA

THÈSE

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Spécialité : Sciences des Matériaux

Présentée par :

MERIEM BEN HAJ SLAMA

Etude multi-échelle et in situ des évolutions microstructurales en conditions isothermes d'aciers bainitiques en lattes

Soutenue publiquement le 01/03/2018 à Nancy devant le jury composé de :

Mme Anne Françoise GOURGUES-LORENZON	Professeur au Centre des Matériaux Mines ParisTech, France	Rapporteur
M. Ludovic THILLY	Professeur à l'Université de Poitiers, France	Rapporteur
M. Stefan ZAEFFERER	Directeur de Recherche au Max-Planck-Institut für Eisenforschung, Allemagne	Examinateur
Mme Kangying ZHU	Ingénieur de Recherche à ArcelorMittal Maizières Research SA, France	Examinateur
M. Mohamed GOUNE	Professeur à l'Université de Bordeaux, France	Président
M. Lionel GERMAIN	Maître de Conférences à l'Université de Lorraine, France	Invité
Mme Nathalie GEY	Chargé de Recherche au CNRS, LEM3, France	Co-directrice de thèse
M. Sébastien ALLAIN	Professeur à l'Université de Lorraine, France	Directeur de thèse

IJL Institut Jean Lamour UMR CNRS 7198 Campus ARTEM, 54000 Nancy

Université de Lorraine – Pôle M4 : matière, matériaux, métallurgie, mécanique

Remerciements

La présente thèse a été réalisée à l'Université de Lorraine et dans le cadre d'un projet du Laboratoire d'Excéllence DAMAS. Le travail de la thèse est un projet de coopération scientifique entre l'institut Jean Lamour (Nancy) et le laboratoire d'Etude des Microstructures et de Mécanique des Matériaux LEM3 (Metz). Le projet de thèse n'aurait pas pu voir le jour sans le soutien du LabEx DAMAS et de la Région Lorraine qui l'ont financé.

Tout d'abord, je voudrais remercier infiniment mes directeurs de thèse M. Sébastien ALLAIN et Mme. Nathalie GEY, et leur exprimer ma gratitude et ma reconnaissance pour leur soutien et pour le temps qu'ils m'ont consacré tout au long de la période de ma thèse. Les conseils précieux qu'ils m'ont prodigués durant la réalisation de ce projet, leur disponibilité et leur investissement permanent m'ont beaucoup aidée et m'ont permis d'avoir une expérience enrichissante et pleine d'intérêt.

Je tiens également à remercier Mme Anne Françoise GOURGUES et M. Ludovic THILLY pour l'attention bienveillante qu'ils ont portée à mon travail et pour avoir accepté d'être rapporteurs et accordé un temps précieux pour évaluer ma thèse.

Mes sincères remerciements s'adressent aussi à M. Mohamed GOUNE pour l'honneur qu'il m'a fait de présider le jury, à M. Stefan ZAEFFERER, Mme Kangying ZHU et M. Lionel GERMAIN qui m'ont fait l'honneur d'en faire partie.

Bien évidemment, je dédie ce travail de thèse à mes parents, pour l'amour qu'ils m'ont donné ma vie durant, pour tous les sacrifices qu'ils ont faits pour m'assurer bonheur et joie de vie. A mes sœurs Rafika et Wissal avec qui je partage les plus beaux moments de ma vie et au près de qui je trouve la totale complicité dans mes loisirs, et le grand soutien dans mon travail.

Je n'oublie pas de remercier tous mes amis qui qui ont participé de prés ou de loin à l'aboutissement de ce travail.Une pensée spéciale à ma chère Hana.

Enfin, je remercie tous les membres des deux laboratoires, l'IJL et le LEM3, pour leur contribution à la réalisation de certaines parties de mon travail, pour les discussions enrichissantes et pour les moments conviviaux qu'ils m'ont offerts durant plus que 3 ans…

SOMMAIRE

Introduction générale : contexte et objectifs de l'étude 7

Chapitre I : Etude bibliographique

I. Les microstructures bainitiques et les classifications « morphologiques » 11
I.1. Classification de Mehl (1939) 14
I.1.1. La bainite inférieure selon Mehl 14
I.1.2. La Bainite supérieure selon Mehl 16
I.2. Classification d'Aaronson (1969) 16
I.3. Classification d'Ohmori (1971) 17
I.4. Classification de Bramfitt et Speer (1990) 19
I.5. Classification de Zajac (2005) 20
I.6. Le cas de la bainite granulaire 21
I.7. Système de classification du comité de la bainite ISIJ (Bainite Committee of Iron and Steel Institute of Japan) 22
I.8. Conclusion 22
II. Cristallographie des structures bainitiques 23
II.1. Relations d'orientation dans les structures martensitiques et bainitiques 23
II.1.1. Relation de Bain 23
II.1.2. Les relations classiques : KS, NW, GT et Pitsch 24
II.1.3. Relations d'Orientation observées en pratique 28
II.1.4. Techniques et méthodes de détermination des relations d'orientation 28
II.1.5. Evolution locale de la RO : Dispersions 31
II.2. Microtextures bainitiques et classifications cristallographiques associées 32
II.2.1. Description multi-échelle et hiérarchique des microstructures en lattes 32
II.2.2. Les différentes classifications 33
II.3. Microstructures de défauts 36
II.3.1 Défauts structuraux des microstructures martensitiques 36
II.3.2 Défauts structuraux des microstructures bainitiques 37
II.4. Conclusion 37
III. Mécanismes de formation des bainites en lattes et granulaire 37
III.1. Controverse sur la transformation bainitique en lattes 38
III.1.1. Théorie « diffusionless » 38
III.1.2. Théorie diffusive 40
III.2. Mécanisme de formation de la bainite granulaire 41
III.3. Conclusion 42
IV. Evolution microstructurale de la bainite lors d'un maintien isotherme 42
IV.1. Mécanismes de revenu d'une structure martensitique en lattes 42
IV.1.1. Vieillissement 43

IV.1.2. Stade I de revenu 43
IV.1.3. Stades II et III de revenu 44
IV.1.4. Stade IV de revenu 44
IV.1.5. Effet sur les propriétés mécaniques (dureté) 44
IV.2. Mécanismes de revenu des microstructures bainitiques en lattes 45
IV.2.1. Phénoménologie 45
IV.2.2. Mécanismes d'évolution morphologique et cristallographique de la ferrite bainitique ... 47
IV.2.3. Mobilité des joints 53
IV.2.4 Energies surfaciques des joints 54
IV.2.5 Evolution de la cémentite lors du revenu 56
V. Conclusion 58
VI. Références 58
Chapitre II : Matériaux et techniques expérimentales
I. Aciers étudiés 67
I.1. Réflexion sur le choix des nuances d'acier 67
I.2. Nuances modèles sélectionnées et leur élaboration 69
II. Traitements thermiques 71
II.1. Dilatomètres utilisés et exploitation du signal dilatométrique 71
II.2. Les cycles thermiques en dilatomètre 74
II.2.1 Les différents traitements 'types' réalisés 74
II.2.2 Récapitulatif de l'ensemble de la campagne de traitement thermique 76
II.3. Traitements thermiques additionnels en bain de sels 78
II.3.1 Condition de traitement 78
II.3.2 Essais mécaniques de traction 79
III. Caractérisation microstructurale par microscopie électronique 80
III.1. Le MEB pour l'étude morphologique des lattes ferritiques et des carbures 80
III.2. Le MET pour l'investigation poussée des carbures 81
III.2.1 Techniques de préparation des lames minces 81
II.2.2. Le mode Imagerie 81
III.2.3 En mode Diffraction 82
III.2.4 Analyses chimique en spectroscopie de dispersion d'énergie (EDS) 84
IV. Caractérisation des microtextures de transformation de phase 84
IV.1. Notion d'orientation et de désorientation: 84
IV.2 Rappel concernant la technique l'EBSD 84
IV.3. Acquisition des cartographies EBSD en mode « résolution améliorée » 86
IV. 4. Exploitation standard des données EBSD 88
V. Organisation des variants au sein des ex-grains austénitiques 89
V.1. Le principe de la reconstruction 90
V.2. Les étapes de reconstruction avec Merengue2 91

V.3 Organisation spatiale des variants en blocs et en paquets avec Decrypt 93
VI. Etude DRX à haute énergie sur ligne de lumière synchrotron 94
VI.1. Post traitement et analyse métallurgique des données de diffraction 96
VII. Références 98

Chapitre III : Analyse microstructurale des Bainites Basse Température et Haute Température

I. La Bainite Basse Température : 103
I.1 Approche classique : localisation des carbures et des joints de lattes 103
I.2 Approche cristallographique par EBSD: 105
I.2.1 Désorientations héritées par la transformation de phase 105
I.2.2 Taille des domaines cristallins versus taille de lattes 108
I. 3 Reconstruction des orientations austénitiques et évaluation de la RO moyenne 110
I. 4 Organisation spatiale des variants: paquet/bloc/sous-bloc 114
I. 5 Comparaison à la Martensite : 116
II. La Bainite Haute Température : 118
II.1 Approche classique : localisation des carbures au sein de lattes 118
II.2 Approche cristallographique par EBSD: 119
II.2.1 Taille des lattes au sens cristallographique 119
II.2.2 Analyse des désorientations entre lattes 122
II.3 Reconstruction des orientations austénitiques et évaluation de la RO moyenne 122
II. 4 Organisation spatiale des variants: paquet/bloc/sous-bloc 123
II.5 Discussion 127
III. Conclusion 129
IV. Références 130

Chapitre IV: Etude comparée des microstructures bainitiques et martensitiques après maintien isotherme

I. Vieillissement en condition de sur-transformation ou de revenu 134
I.1 Microstructure bainitique basse température et martensitique 134
I.2 Microstructure bainitique haute température 139
I.2.1 Décomposition de la matrice ferritique 139
I.2.2 Maturation des carbures 142
II. Effet de la température du maintien sur l'évolution des deux microstructures bainitiques BBT et BHT 145
II.1 Effet de l'augmentation de la température de maintien pour la BBT 145
II.2 Effet de la diminution de la température du maintien sur la bainite BHT 146
III. Discussion 147
III.1. Condition de granularisation 147
III.2. Quantification du niveau de décomposition de la matrice ferritique 147
IV. Conclusions 150
V. Références 150

Chapitre V : Granularisation des structures Bainitiques Mixtes en maintien isotherme long _ Cinétiques et Mécanismes

Introduction 153
I. Granularisation des microstructures mixtes 155
I.1. Décomposition de la matrice ferritique 155
I.1.1. Sur-Transformation de la microstructure BMIXTE (Nuance N1) 156
I.1.2. Sur-Transformation de la microstructure BMIXTE (Nuance N2) 159
I.1.3. Revenu de la microstructure B-M (Nuance N1) 162
I.2. Maturation des carbures 163
I.2.1. Evolutions globales comparées en MEB 164
I.2.2. Etude structurale des carbures en MET 165
I.2.3. Etude de la chimie des carbures en MET 166
I.3. Synthèse 168
I.3.1. Etapes respectives de décomposition des bainites supérieures et inférieures 168
I.3.2. Lien entre maturation et décomposition 170
I.3.3. Effet de la composition nominale 170
II. Etude *in situ* de la granularisation des microstructures BMIXTE par DRXHE 170
II.1. Phases en présence 171
II.2 Cinétiques de transformation bainitique 172
II.3 Sursaturation en carbone 176
II.4 Evolution du paramètre de déformation et de la densité de dislocations 178
II.4.1. Etude *in situ* sur les nuances N1 et N2 178
II.4.2. Etude *post mortem* sur la nuance N2 180
II.5 Conclusion intermédiaire 182
III. Mécanismes de disparition des joints de fortes désorientations 182
III.1. Mécanisme de type SIBM 183
III.2. Mécanisme de type « régression » 184
IV. Conclusion du chapitre 188
V. Références 189
Conclusion générale 191
Perspectives 193
Annexe1
Annexe2
Annexe3
Annexe4

Introduction générale : contexte et objectifs de l'étude

Les aciers à microstructure bainitique sont utilisés industriellement pour leur bon compromis entre résistance, ductilité et ténacité. On les utilise par exemple pour la fabrication de pipelines, de cuves de centrale nucléaire mais aussi de façon plus courante pour des pièces de liaisons au sol embouties ou des pièces moteurs forgées dans la construction automobile. Lors de leur fabrication (bobinage à chaud des tôles, enroulage à chaud de fils machine, forgeage, …) et utilisation (soudage), ils peuvent subir des traitements thermiques après transformation bainitique susceptibles de dégrader leurs propriétés, en particulier de résistance et de ténacité [2].

(a)  (b) 

Fig.1 : Exemples de pièces industrielles en aciers bainitiques (a) Cuve de centrale nucléaire en 16MND5 (http://www.new.areva.com/FR/activites-6179/les-composants-lourds-de-la-boucle-primaire.html) (b) Bras de suspension en tôle à chaud en CP800 ArcelorMittal (http://automotive.arcelormittal.com/europe/products/AHSS/CP/EN)

Les travaux sur cette question ont débuté chez ArcelorMittal en 2013 par des recherches sur des aciers bainitiques modèles FeNiC. Il est apparu que certaines nuances montraient des pertes de résistance mécanique si on les maintenait sur des temps courts à la température de transformation, y compris à des températures utilisées habituellement pour le bobinage de tôles à chaud (en dessous de 500°C). L'étude microstructurale associée a été conduite avec l'aide du LEM3 compte tenu de la complexité des microstructures. Ces travaux préliminaires ont donné lieu à cette thèse qui a débuté en 2014, financée par le LABEX DAMAS et la Région Lorraine, en collaboration avec ArcelorMittal. Les travaux ont été menés principalement à l'IJL pour la Microscopie Electronique à Transmission (MET) et la Diffraction des Rayons X (DRX) et au LEM3 pour la Microscopie à Balayage (MEB) et la diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD - Electron Back-Scaterred Diffraction).

La présente thèse se donne pour objectif l'étude multi-échelle et in-situ des évolutions microstructurales en conditions isothermes d'aciers bainitiques en lattes. Ces microstructures, comme nous allons le démontrer, ne sont pas aussi stables en température qu'attendu. Nous nous intéresserons aux différents mécanismes de maturation microstructurale à l'œuvre et nous essayerons de mieux comprendre leurs interactions. La finalité de ce travail est de pouvoir les maitriser et donc éviter une dégradation inattendue des propriétés de ces aciers.

Le manuscrit de cette thèse s'organise autour de cinq chapitres.

Le premier chapitre est essentiellement bibliographique. Il s'intéresse en premier lieu aux différentes classifications des microstructures bainitiques de la littérature ; de celles basées sur des critères purement morphologiques aux plus récentes basées sur les microtextures. Elles

sont multiples et peu cohérentes entre elles. Cette « diversité » se retrouve aussi dans les théories expliquant la formation des microstructures bainitiques. Nous conclurons ce chapitre par une description des mécanismes de vieillissement connus des microstructures bainitiques et martensitiques lors de traitements thermiques prolongés, mécanismes allant de la restauration au grossissement des carbures.

Le deuxième chapitre commence par une description des aciers de l'étude, en l'occurrence deux aciers modèles Fe-0.33%C-5%Ni (acier de référence) et Fe-0.13%C-5%Ni, et un troisième allié au Mn Fe-0.33%C-1%Mn-2.5%Ni. Le chapitre présente aussi la méthodologie de travail que nous avons suivie, des traitements thermiques aux différentes techniques expérimentales de caractérisations des microstructures. Dans nos travaux, nous avons principalement fait appel au MEB et au MET, à de l'EBSD en MEB couplé à l'analyse numérique de reconstruction et enfin la DRX à Haute Energie (DRXHE) sur ligne de lumière synchrotron.

Le troisième chapitre constitue une étude microstructurale détaillée des produits de transformation bainitique obtenus respectivement à basse température et à haute température en condition isotherme sur notre nuance de référence. Elle a été menée en MEB pour étudier la morphologie, la taille et l'arrangement des phases constituantes, ensuite en EBSD pour déterminer les désorientations entre les domaines cristallographiques. Cette étape de caractérisation est indispensable avant de pouvoir étudier la dénaturation des microstructures et permet aussi d'appliquer les approches de reconstruction numérique en EBSD (MERENGUE2 et DECRYPT). Le couplage des reconstructions de grains et des variants cristallographiques permet d'identifier et de définir les deux structures bainitiques en lattes présentes dans nos aciers, une bainite inférieure et une bainite supérieure.

Le quatrième chapitre compare les comportements en condition isotherme prolongée de nos aciers bainitiques et d'une microstructure martensitique. Nous montrerons que certaines microstructures peuvent évoluer à des températures étonnamment basses vers des microstructures granulaires. Ces travaux nous ont permis de définir le processus de « granularisation », qui consiste en une décomposition de la matrice ferritique et en une maturation des carbures. Nous montrerons que seules des microstructures contenant de la bainite supérieure peuvent, en fait, devenir granulaires dans les conditions étudiées.

Au cinquième et dernier chapitre, nous nous intéresserons plus en détail aux différents mécanismes opérant lors de la granularisation. Pour ce travail, nous avons imaginé, produit et granularisé des microstructures mixtes modèles, contenant de la bainite supérieure et inférieure. Après avoir confirmé que la bainite inférieure ou la martensite ne peut se décomposer qu'en présence de bainite supérieure, nous étudierons dans le détail l'évolution des carbures et le processus de restauration durant les maintiens. Ces résultats nous amèneront à considérer deux mécanismes susceptibles d'expliquer la disparition des joints de fortes désorientations de nos structures. Enfin, nous conclurons et évoquerons les perspectives de cette étude.

[1] D.K. Matlock, J.G. Speer, Microstructure and Texture in Steels and Other Materials, Jamshedpur, INDIA, A. Haldar, S. Suwas, D. Bhattacharjee (Eds.), 2009.

[2] H.D.K. H. Bhadeshia, Bainite in Steels, IOM Communication, London, 2001.

Chapitre I : Etude bibliographique

I. Les microstructures bainitiques et les classifications « morphlogiques » 11
I.1. Classification de Mehl (1939) 14
I.1.1. La bainite inférieure selon Mehl 14
I.1.2. La Bainite supérieure selon Mehl 16
I.2. Classification d'Aaronson (1969) 16
I.3. Classification d'Ohmori (1971) 17
I.4. Classification de Bramfitt et Speer (1990) 19
I.5. Classification de Zajac (2005) 20
I.6. Le cas de la bainite granulaire 21
I.7. Système de classification du comité de la bainite ISIJ (Bainite Committee of Iron and Steel Institute of Japan) 22
I.8. Conclusion 22
II. Cristallographie des structures bainitiques 23
II.1. Relations d'orientations dans les structures martensitiques et bainitiques 23
II.1.1. Relation de Bain 23
II.1.2. Les relations classiques : KS, NW, GT et Pitsch 24
II.1.3. Relations d'Orientations observées en pratique 28
II.1.4. Techniques et méthodes de détermination des relations d'orientations 28
II.1.5. Evolution locale de la RO : Dispersions 31
II.2. Microtextures bainitiques et classifications cristallographiques associées 32
II.2.1. Description multi-échelle et hiérarchique des microstructures en lattes 32
II.2.2. Les différentes classifications 33
II.3. Microstructures de défauts 37
II.3.1 Défauts structurels des microstructures martensitiques 37
II.3.2 Défauts structurels des microstructures bainitiques 38
II.4. Conclusion 38
III. Mécanismes de formation des bainites en lattes et granulaire 38
III.1. Controverse sur la transformation bainitique en lattes 39
III.1.1. Théorie « diffusionless » 39
III.1.2. Théorie diffusive 40
III.2. Mécanisme de formation de la bainite granulaire 41
III.3. Conclusion 42

IV. Evolution microstructurale de la bainite lors d'un maintien isotherme 42
IV.1. Mécanismes de revenu d'une structure martensitique en lattes 42
IV.1.1. Vieillissement 43
IV.1.2. Stade I de revenu 43
IV.1.3. Stade II et III de revenu 44
IV.1.4. Stade IV de revenu 44
IV.1.5. Effet sur les propriétés mécaniques (dureté) 44
IV.2. Mécanismes de revenu des microstructures bainitiques en lattes 45
IV.2.1. Phénoménologie 45
IV.2.2. Mécanismes d'évolution morphologique et cristallographique de la ferrite bainitique 47
IV.2.3. Mobilité des joints 53
IV.2.4 Energies surfaciques des joints 54
IV.2.5 Evolution de la cémentite lors du revenu 56
V. Conclusion 58
VI. Références 58

Introduction

La bainite a été identifiée dès la fin des années 1920 par l'équipe de Davenport et Bain [1] et nommée en l'honneur de ce dernier. La bainite est un produit de décomposition au refroidissement de l'austénite qui apparait à des températures intermédiaires entre les transformations diffusives ferrito-perlitiques et la transformation martensitique de nature displacive. A l'instar de la perlite, il ne s'agit pas d'une phase *stricto sensu* au sens thermodynamique car elle est constituée d'agrégats aciculaires de ferrite mais aussi de phases secondaires (carbures, martensite ou austénite). Du point de vue des propriétés mécaniques, elle peut présenter une meilleure ductilité et ténacité que la martensite revenue pour la même dureté [2]. Cela en fait une microstructure particulièrement intéressante d'un point de vue industriel.

« Bainite » est toutefois un terme générique qui cache en réalité une très grande diversité de microstructures et de produits de décomposition de l'austénite. Afin de préciser notre propos et notre domaine d'étude, nous allons dans un premier temps revenir sur les grandes classifications de structures bainitiques établies dans la littérature sur des critères « morphologiques » et selon la nature des secondes phases. Puis, nous nous intéresserons aux classifications « cristallographiques » des structures bainitiques qui découlent des relations d'orientations cristallographiques particulières entre phase bainitique fille et austénite mère. Ces dernières classifications sont généralement plus récentes car elles sont basées sur des analyses de microtextures, analyses rendues possibles par l'avènement des techniques EBSD en MEB.

Nous consacrerons la troisième section de ce chapitre aux mécanismes de formation des bainites. Ces mécanismes et leurs cinétiques font l'objet encore à l'heure actuelle, d'une active controverse dans laquelle nous ne prendrons pas partie. Toutefois, nous décrirons les grandes caractéristiques de ces théories sur lesquelles nous devrons nous appuyer pour analyser nos résultats. Enfin, nous dresserons un état de l'art des mécanismes de revenu et vieillissement en condition isotherme des structures bainitiques et martensitiques. Nous montrerons en particulier que les mécanismes concernant la bainite sont peu documentés et nous discuterons des forces motrices de ces processus.

I. Les microstructures bainitiques et les classifications « morphologiques »

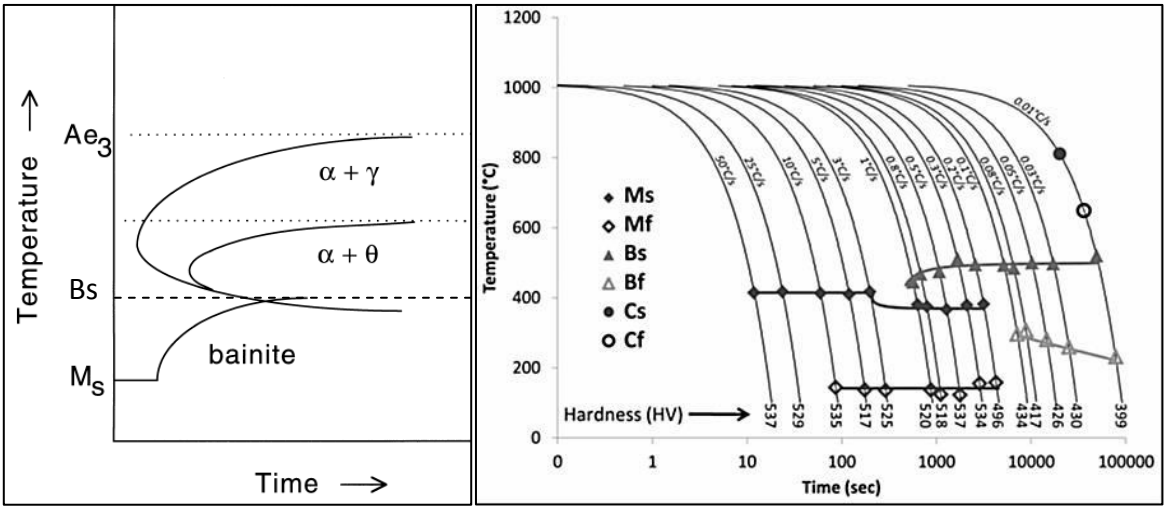
La morphologie de la ferrite bainitique ainsi que la nature et la répartition des secondes phases varient très sensiblement avec les conditions de refroidissement et les températures de transformation. Nous verrons de nombreux exemples dans ce qui suit. La transformation bainitique peut en effet avoir lieu dans un large domaine de températures commençant à des températures inférieures à celles des transformations perlitiques fines jusqu'à la température de début de transformation martensitique, communément appelée Ms (Martensite Start). La transformation martensitique étant de nature displacive et ne nécessitant pas de diffusion des éléments sur des grandes distances, l'avancée de la transformation est uniquement fonction de la température (la différence entre T et Ms) et non fonction du temps. Plusieurs travaux ont toutefois également suggéré la possibilité de formation de la bainite sous la température Ms [3-5]. Dans la troisième partie de ce chapitre, dédiée aux mécanismes de transformation de phase, nous montrerons que certains auteurs s'attendent à ce que la transformation ne puisse se produire que sous une température critique appelée Bs (Bainite Start).

La figure I.1.a montre un diagramme schématique tiré de [6] des domaines de transformations (décomposition de l'austénite) attendues en condition isotherme. Seuls les débuts de

transformation sont représentés. Les transformations ferritique (α) et perlitique (α+θ) présentent une courbe en forme de C sous Ae_3 (température critique d'austénitisation totale à l'équilibre) caractéristique des transformations diffusives (compétition entre germination et croissance). De façon conventionnelle en métallurgie des aciers, α représente la ferrite cubique centrée et θ la cémentite.

Dans cette représentation TTT (Temps Température Transformation), le début de la transformation martensitique est une droite horizontale à M_s. La bainite présente, pour cet auteur, une double caractéristique ; elle n'apparait que sous B_s (comme une transformation martensitique) mais présente un nez de transformation en C comme les transformations diffusives, dans un domaine de températures intermédiaires. La figure I.1.b montre un diagramme similaire des débuts de transformations en condition de refroidissement contrôlées, c'est-à-dire un diagramme TRC (Transformation en Refroidissement Continu). On retrouve les mêmes phases constituantes pour un acier fortement allié. Les compositions des aciers seront données dans tout ce qui suit, et sauf mention contraire, en masse.

Dans ce large domaine (sous Bs), en condition de transformations isothermes, on peut observer des microstructures bainitiques sensiblement différentes en microscopie optique ou électronique. C'est pour cette raison que différents chercheurs ont proposé leurs propres classifications des microstructures bainitiques, car il n'existe pas de consensus sur les critères de morphologie ou de composition à considérer. Nous montrerons en conséquence que ces classifications ne sont pas nécessairement compatibles entre elles, en particulier quand il s'agit de définir les bainites lamellaires (ou « en lattes ») de type supérieur et de type inférieur. Ces deux adjectifs se réfèrent aux températures de transformation relatives de ces bainites, la première se formant juste sous Bs et la seconde dans le domaine de basses températures. La figure I.2 tirée de [8] montre par exemple la nature des phases attendues sous Bs dans des aciers conventionnels. Aux températures « intermédiaires », même si ce domaine n'est généralement pas bien défini, on peut former une microstructure mixte contenant les deux types de bainites.



(a) (b)

Fig.I.1 : (a) Diagramme TTT (Transformation Temps Température) type d'un acier hypoeutectoïde [6] et (b) diagramme TRC (Transformation en Refroidissement Continu) d'un acier Fe-0.26%C-0.65%Mn-1%Si-2.7%Cr-1%Ni-0.42%Mo-1%W [7].

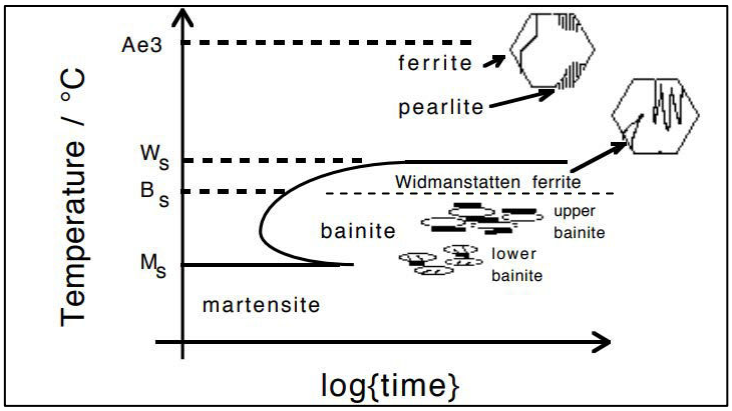


Fig.I.2: Diagramme TTT (Transformation Temps Température) d'un acier conventionnel avec les phases formées selon les domaines de température [8].

Dans cette section, nous allons exposer les différentes classifications basées essentiellement sur des critères de morphologie des phases. Cependant, il importe de mentionner qu'il existe d'autres classifications, apparues en parallèle avec les progrès de la microscopie électronique et des techniques de caractérisation EBSD; classifications basées sur des analyses cristallographiques et de microtextures locales. Nous les détaillerons dans la prochaine section, une fois introduites les notions de Relations d'Orientation (RO) et de désorientations cristallographiques entre variants. Ces développements dans la classification mais aussi dans les méthodes d'analyse expliquent d'ailleurs que certains éléments de la terminologie ont pu aussi évoluer, comme le terme «lattes», utilisé à son apparition pour décrire les sous-unités des bainites lamellaires. Les sous-unités peuvent être mises en évidence assez facilement dans les aciers nano-bainitiques sans carbure, comme le montre la figure I.3. Il s'agit d'une micrographie en MET (Microscopie Electronique à Transmission) de ce qui pourrait apparaitre en microscopie conventionnelle comme une « latte » de bainite (plaquette selon les auteurs) et elle-même constituée de sous-unités délimitées par de l'austénite résiduelle. On utilise très souvent le terme de latte en microscopie optique pour décrire l'élément de base de la structure lamellaire.

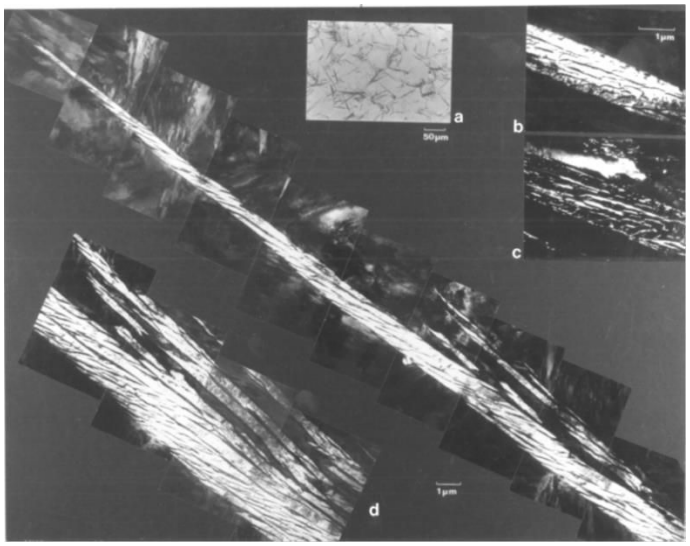


Fig.I.3 : (a) Micrographie optique de bainite supérieure dans un acier Fe-0.43%C-2%Si-3%Mn; (b)/(c) Micrographies MET en champ clair et champ sombre des sous-unités de la même bainite supérieure séparées par de l'austénite résiduelle (d) Micrographies MET assemblées pour montrer la structure globale d'une plaquette, tirés de [6].

Compte tenu de cette diversité de terminologie et de classification, nous serons amenés à faire des choix, certainement sources de discussions, de terminologie dans ce chapitre et les suivants.

I.1. Classification de Mehl (1939)

I.1.1. La bainite inférieure selon Mehl

La première classification des microstructures bainitiques a été proposée par Mehl en 1939. Elle se base en conséquence sur des observations morphologiques principalement réalisées en microscopie optique après attaque. La définition de la bainite inférieure initialement proposée dans cette classification [9] est encore largement utilisée. Elle décrit ce type de bainite comme étant des structures lamellaires de ferrite longues et étroites avec deux familles de carbures:

- des carbures qui séparent les lattes de ferrite bainitique, et qui précipitent dans l'austénite enrichie en carbone. Il s'agit donc de carbures inter-lattes
- des carbures plus fins et en forme de plaquettes, qui précipitent dans la ferrite sursaturée et dont le grand axe présente un angle de 55° à 60° avec la direction longitudinale de la ferrite. Il s'agit donc de carbures intra-lattes**.** Ces carbures présentent en fait une relation d'orientation cristallographique particulière avec la matrice ferritique. Les lattes de bainite inférieure contiennent généralement un seul et unique variant de carbures.

Dans cette définition, les lattes sont les unités de ferrite de forme aciculaire. La figure I.4 montre une micrographie MET d'un acier faiblement allié, dont la microstructure en lattes présente les deux populations de carbures (inter et intra-lattes) qui permet de qualifier cette microstructure de bainitique inférieure selon Mehl. On notera que, dans ces structures, les carbures intra-lattes sont tous parallèles et en relation d'orientation particulière avec la matrice.

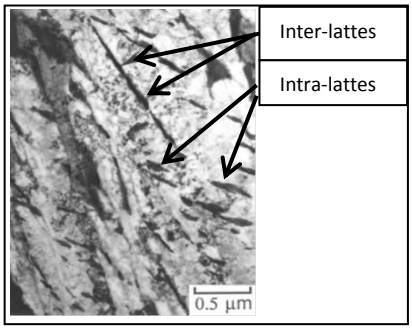


Fig.I.4 : Micrographie MET d'une bainite inférieure formée à 435°C dans un acier Fe-0.3%C-4.08%Cr d'après [6]. Les carbures intra- et inter-lattes apparaissent en contraste sombre.

Dans la bainite inférieure, les carbures intra-lattes ne sont pas toujours des particules de cémentite; les travaux de Schissler et al. [10] ont mis en évidence par exemple la précipitation de carbures de transition orthorhombiques [11] dans la bainite inférieure d'un acier Fe-1.15%C-3.9%Si. Plus fréquemment, les auteurs observent le carbure de transition ε dans la bainite inférieure [12]. Une interprétation possible de leur présence a été proposée par Matas et Hehemann [13]. Ceux-ci suggèrent que les carbures ε précipitent en fait systématiquement avant la cémentite lors de la transformation bainitique et se décomposent dans un second temps en cémentite lors d'un maintien isotherme. La conversion des carbures ε en cémentite serait d'autant plus rapide que la température de transformation est élevée. Elle dépendrait également de la composition de l'acier.

La détection de ces carbures hexagonaux (de composition chimique supposée $Fe_{2,3}C$) dans la bainite inférieure, implique un excès important de carbone dans la ferrite bainitique lors de sa formation [14]. Cette observation tendrait à supporter une approche « displacive » de la transformation bainitique dont nous discuterons dans la troisième partie de ce chapitre. Dans son ouvrage de référence sur le sujet, « Bainite In Steels » [6], Bhadeshia reprend d'ailleurs différents travaux où des carbures ε ont été observés dans la bainite inférieure. Le tableau I.1 est une reproduction de cette synthèse.

C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	V	Reference
0.87	–	–	–	–	–	–	Austin and Schwartz, 1952, 1955
0.95	0.22	0.60	3.27	1.23	0.13	–	Matas and Hehemann, 1961
0.60	2.00	0.86	–	0.31	–	–	Matas and Hehemann, 1961
1.00	0.36	–	0.20	1.41	–	–	Matas and Hehemann, 1961
0.58	0.35	0.78	–	3.90	0.45	0.90	Matas and Hehemann, 1961
1.00	2.15	0.36	–	–	–	–	Deliry, 1965
0.60	2.00	0.86	–	0.31	–	–	Oblak and Hehemann, 1967
0.60	2.00	–	–	–	–	–	Hehemann, 1970
0.41	1.59	0.79	1.85	0.75	0.43	0.08	Lai, 1975
0.54	1.87	0.79	–	0.30	–	–	Huang and Thomas, 1977
0.85	2.55	0.3	–	–	–	–	Dorazil and Svejcar, 1979
0.74	2.40	0.51	–	0.52	–	–	Sandvik, 1982a

Tab.I.1 : Compositions chimiques et références correspondantes d'aciers où le carbure ε a été mis en évidence dans la bainite inférieure ; tiré de [6].

Concernant les carbures inter-lattes, des carbures de type κ ont été observés entre les lattes de bainite inférieure dans des aciers à haut carbone [15-16]. Au cours d'un maintien isotherme, ces carbures se transformeraient d'abord en carbures χ puis en cémentite plus stable. Les carbures inter-lattes les plus couramment observés sont toutefois (ou en conséquence) de la cémentite.

La microstructure bainitique inférieure présente donc une très forte similitude avec celle de la martensite revenue (pour des alliages bas carbone). Il s'agit aussi d'un produit de décomposition de l'austénite à basse température et qui présente aussi une structure ferritique contenant des carbures de transition ou de la cémentite intra- et inter-lattes. L'une des différences souvent mise en exergue est que la martensite revenue présente plusieurs variants de carbures à l'intérieur de la même latte [6] tandis que la bainite inférieure n'en présente généralement qu'un seul. Ces multiples variants sont par exemple visibles sur la micrographie MET de la figure I.5 (la structure lamellaire n'est pas mise en évidence par contre). Nous verrons dans la suite de ce chapitre que bainites et martensites revenues se distinguent aussi par leurs mécanismes de transformation bien évidemment, leurs stabilités en condition isotherme, leurs défauts ou leurs relations d'orientation (RO) avec l'austénite.

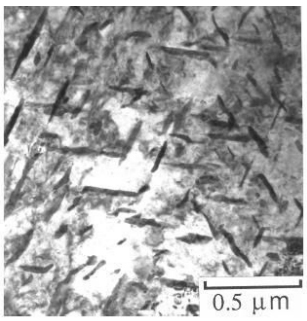


Fig.I.5 : Micrographie MET montrant la précipitation multi-variants typique des carbures dans la martensite revenue, tirée de [17]. Les carbures apparaissent en contraste sombre.

I.1.2. La Bainite supérieure selon Mehl

D'après la classification de Mehl, la microstructure bainitique supérieure est constituée de lattes parallèles, longues et étroites de ferrite séparées par des particules de cémentite distribuées de façon discontinue. Elle se caractérise par une seule famille de carbures : des carbures inter-lattes.

Outre la cémentite, la bainite supérieure peut présenter d'autres types de précipités, et en particulier dans les aciers contenant des teneurs importantes en silicium. Dans « Bainite In Steels », Bhadeshia répertorie les différents types de carbures observés dans la bainite supérieure que nous reprenons au tableau I.2. La plupart de ces carbures (de transition) se forment rapidement car ils présentent une force motrice de germination élevée, mais ils se transforment en cémentite au fur et à mesure de l'avancement de la transformation et/ou du maintien isotherme. On retrouve souvent, au final, uniquement de la cémentite dans les microstructures bainitiques supérieures.

Carbide	Crystal System	Fe, M/C	Reference
κ	Hexagonal $a = 6.9$ $c = 4.8$ Å	1.37	Deliry (1965) Pomey (1966)
ϵ	Hexagonal $a = 2.735$ $c - 4.339$ Å	2.4–3	Jack (1950, 1951) Hofer *et al.* (1949)
χ	Monoclinic $a = 11.563$ $b = 3.573$ Å $c = 5.058$ $\beta = 97.44°$	2.2 or 2.5	Hägg (1934)
η	Orthorhombic $a = 4704$ $b = 4.318$ Å $c = 2.830$	2	Hirotsu and Nagakura (1972)
Fe_3C	Orthorthombic $a = 4.525$ $b = 5.087$ Å $c = 6.743$	3.0	
M_7C_3	Orthorhombic $a = 4.526$ $b = 7.010$ Å $c = 12.142$	7/3	Morniroli *et al.* (1983)
$(Fe, Si)C_X$	Orthorhombic $a = 8.8$ $b = 9.0$ $c = 14.4$ Å		Konoval *et al.* (1959)
$(Fe, Si)C_X$	Orthorhombic $a = 6.5$ $b = 7.7$ $c = 10.4$ Å		Schissler *et al.* (1975)
$(Fe, Si, Mn)C_X$	Orthorhombic $a = 14.8$ $b = 11.4$ $c = 8.5$ Å		Schissler *et al.* (1975)
$M_{23}C_6$	Cubic F $a = 10.621$ Å	23/6	
M_6C	Cubic F $a = 11.082$ Å	6	
c	Triclinic $a = 6.38$ $b = 5.05$ $c = 4.59$ Å $a = 90.0°$ $\beta = 70.1°$ $\gamma = 84.7°$		Sandvik (1982b)

Tab.I.2 : Les différents carbures observés dans la bainite supérieure d'après une synthèse de [6]. Fe, M/C correspond au ratio atomique métal/carbone observé.

I.2. Classification d'Aaronson (1969)

La classification proposée par Aaronson et al. en 1969 [18] a permis d'étendre la classification de Mehl en incluant d'autres morphologies. La figure I.6 montre les différents types retenus par ces auteurs. On retrouve sur ces schémas en (c) et (d) les bainites supérieures et inférieures décrites précédemment. Cette classification est non seulement basée sur des critères morphologiques, mais donne aussi des indications sur les mécanismes possibles de formation des microstructures. Par exemple, il explique la formation de la bainite inférieure en lattes ayant ces carbures alignés en RO avec la ferrite, par une croissance de

sous-domaines en arête de poisson à partir d'une fine structure initiale (d). Les carbures germant successivement aux interfaces présentent alors un angle particulier par rapport à la direction de la structure globale. Cette classification est toutefois peu utilisée à notre connaissance, car les autres types de bainites (a, b, e et f) sont relativement rares en pratique ou difficiles à mettre en évidence.

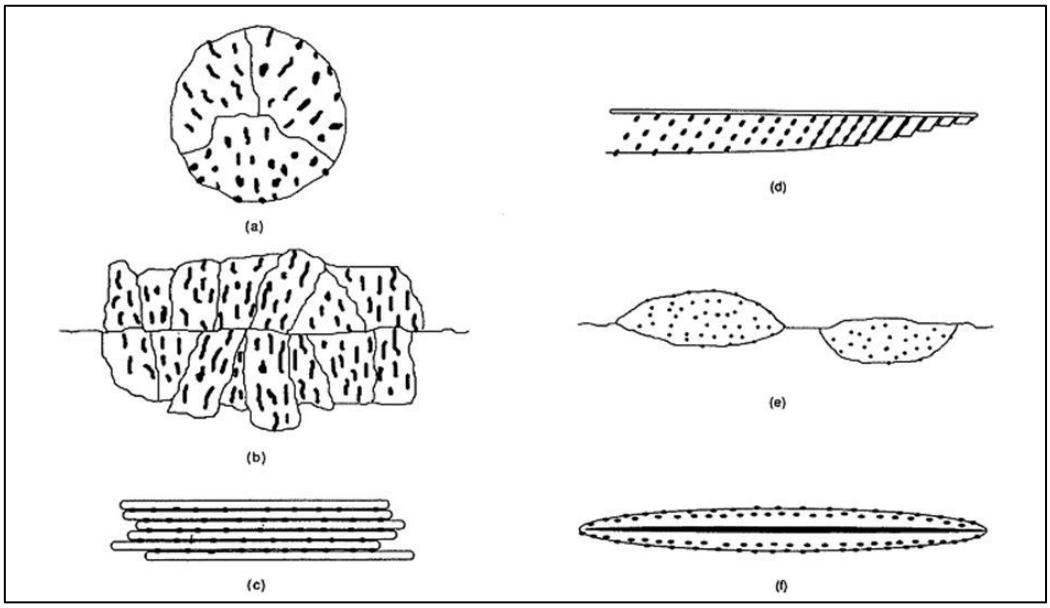


Fig.I.6 : Schématisation des structures bainitiques (ferrite en blanc et cémentite en noir) selon la classification d'Aaronson (a) bainite nodulaire (b) bainite colonnaire (c) bainite supérieure (d) bainite inférieure (e) bainite allotriomorphique (f) bainite inversée ; tirée de [18].

I.3. Classification d'Ohmori (1971)

La classification due à Ohmori et al. [19,20] s'appuie sur des considérations morphologiques mais s'intéressent aussi à la nature des secondes phases et aux conditions de transformation. Selon ces auteurs, seule une bainite de nature supérieure peut exister en condition isotherme dans le cas des aciers à bas carbone. Ces travaux ont abouti par la suite, à une sous-classification de la bainite supérieure en trois types :

- Le type BI présente une structure en lattes sans carbure, avec de l'austénite résiduelle inter-lattes
- Le type BII est la bainite supérieure à carbures décrite selon la classification de Mehl
- Le type BIII est défini par une structure bainitique en lattes contenant uniquement des carbures intra-lattes.

Les domaines de température d'apparition de ces trois types sont précisés sur le diagramme TTT de la figure I.7. Le type BI se forme entre 600°C et 500°C, le type BII se forme entre 500°C et 450°C et le type BIII se forme à plus basse température avant d'atteindre Ms.

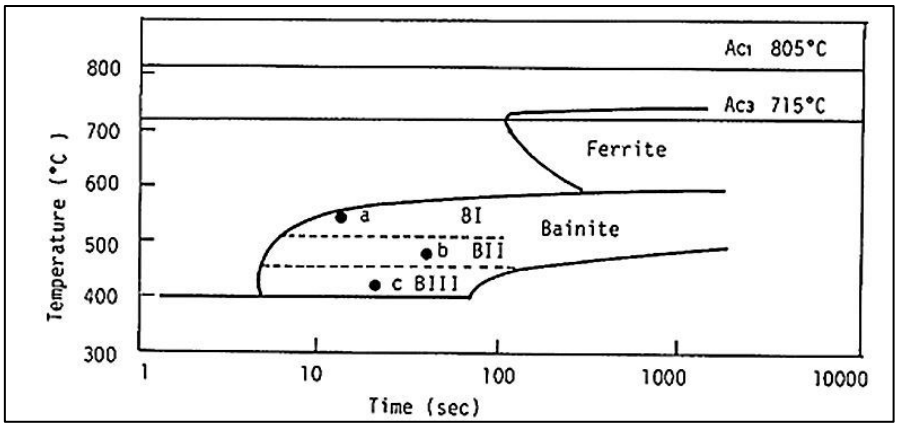


Fig.I.7 : Diagramme TTT typique d'un acier bas carbone montrant les domaines de formation des bainites BI, BII et BIII selon [20].

D'après ces auteurs, le type BIII est souvent confondu à tort avec la bainite inférieure. De leur point de vue, ce type de bainite se caractérise par la présence de carbures intra-lattes uniquement, contrairement à la bainite inférieure « typique » de Mehl qui contient à la fois des carbures intra-lattes et inter-lattes. Toutefois, de notre point de vue, il est très difficile de faire ce distinguo par rapport à la topologique car ce type BIII possède une description très proche de celle de la bainite inférieure d'Aaronson ou de Mehl. Leurs mécanismes de formation ne sont pas très différents non plus. En effet, Ohmori et al. proposent un mécanisme de formation de la bainite BIII basé sur la précipitation de la cémentite sur l'interface frontale des sous-unités de ferrite bainitique. Ces sous-unités coalescent par la suite laissant les carbures intra-lattes à l'intérieur de la plaquette ainsi formée. La différence principale avec le modèle d'Aaronson réside donc dans le fait que la précipitation de la cémentite ne se produise pas de façon parallèle à la direction de croissance de la ferrite. Les mécanismes de formation des trois types BI, BII et BIII sont schématisés sur la figure I.8.

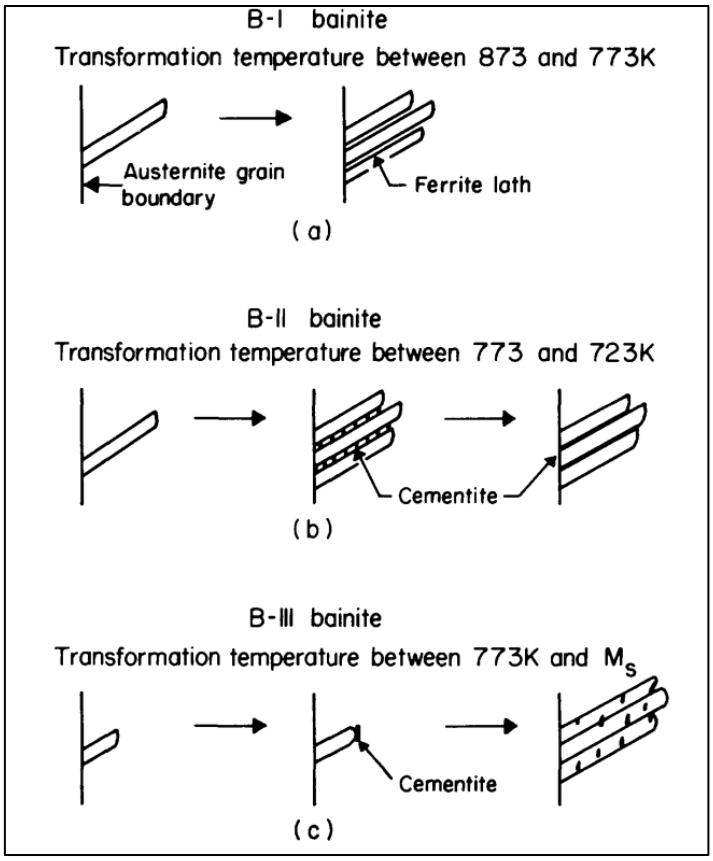


Fig.I.8 : Représentation schématique des mécanismes de formation de la bainite supérieure dans les aciers bas-carbone faiblement alliés d'après Ohmori et al. [19]. Les trois types BI, BII et BIII sont décrits dans le texte et se forment en condition isotherme dans les domaines de température de la figure I.7.

I.4. Classification de Bramfitt et Speer (1990)

La classification plus récente de Bramfitt et Speer [21] ne tient pas compte de la température de transformation mais plutôt de la nature et de la morphologie des secondes phases, contrairement à celle de Mehl. Elles distinguent principalement trois types de bainite, repris sur la figure I.9:

- B1, constitué de ferrite aciculaire (lattes) avec des carbures intra-lattes (cémentite ou carbures ε)
- B2, constitué de lattes ferritiques séparées soit par des particules de cémentite soit par des films d'austénite et de martensite (M/A)
- B3, comportant des lattes de ferrite avec la présence d'ilots M/A ou de perlite.

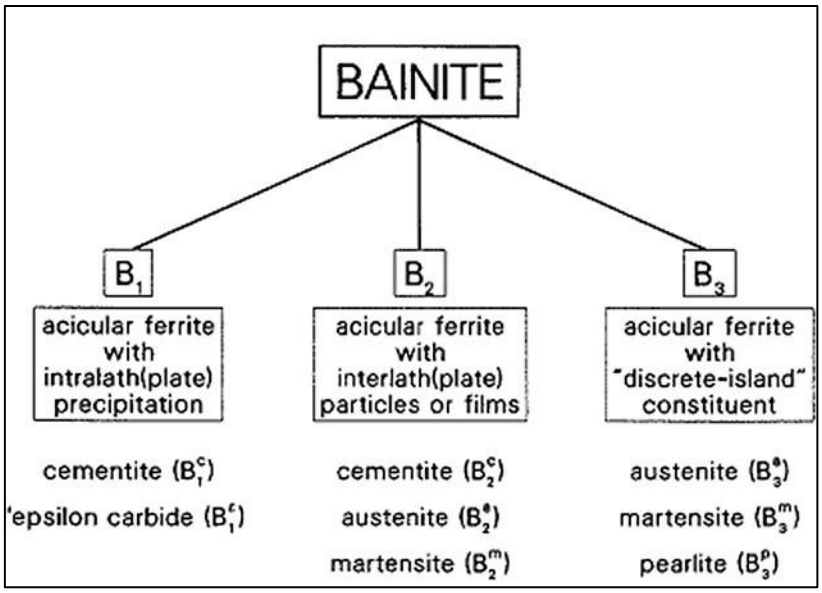


Fig.I.9: Système de classification morphologique de la bainite proposé par Bramfitt et Speer [21].

On retrouve dans cette classification, les bainites supérieures BI, BII et BIII d'Ohmori (respectivement $B_2^{a,m}$, B_2^c et B_1^c), la bainite supérieure de Mehl (B_2^c) et la bainite inférieure d'Aaronson (B_1^c), mais pas la bainite inférieure typique de Mehl contenant à la fois, la cémentite inter- et intra-lattes.

I.5. Classification de Zajac (2005)

Plus récemment encore, Zajac et al. [22] ont proposé une nouvelle classification morphologique des bainitiques qui distinguent cinq grandes catégories: bainite supérieure, bainite supérieure dégénérée, bainite inférieure, bainite inférieure dégénérée et enfin, bainite granulaire. La figure I.10 montre ces cinq types en précisant les secondes phases présentes pour chacun. Ces auteurs ont aussi ajouté, pour la première fois, un critère cristallographique à ces définitions que nous présentons plus loin dans ce chapitre.

D'après ces travaux, la bainite supérieure se présente nécessairement sous forme de lattes de ferrite avec de la cémentite inter-lattes et parfois des précipités intra-lattes en fonction de la composition de l'acier, rejoignant la classification de Ohmori (BIII) et donc en contradiction avec celle de Mehl, d'Aaronson ou de Bramfittt. Dans la bainite supérieure dégénérée, les carbures inter-lattes sont remplacés par des films d'austénite résiduelle enrichie en carbone ou par des films mixtes martensite/austénite (M/A). Il s'agit globalement de la structure BI d'Ohmori ou B2 de Bramfitt. Selon cette approche, la bainite inférieure doit présenter une structure ferritique aciculaire en lattes mais qui contient uniquement des carbures intra-lattes, faisant un angle 60° avec la direction longue de la ferrite, et souvent en contact avec un joint de latte. La microstructure bainitique de la figure I.4 ne rentre donc pas dans cette catégorie par exemple.

Dans ces travaux, un nouveau type de bainite inférieure a été mis en évidence dans des aciers complexes bas carbone X100 et X120. Cette structure est qualifiée de bainite inférieure dégénérée. Il s'agit d'une bainite inférieure dont les carbures sont substitués de petits îlots MA intra-lattes comme le montre la figure I.11.

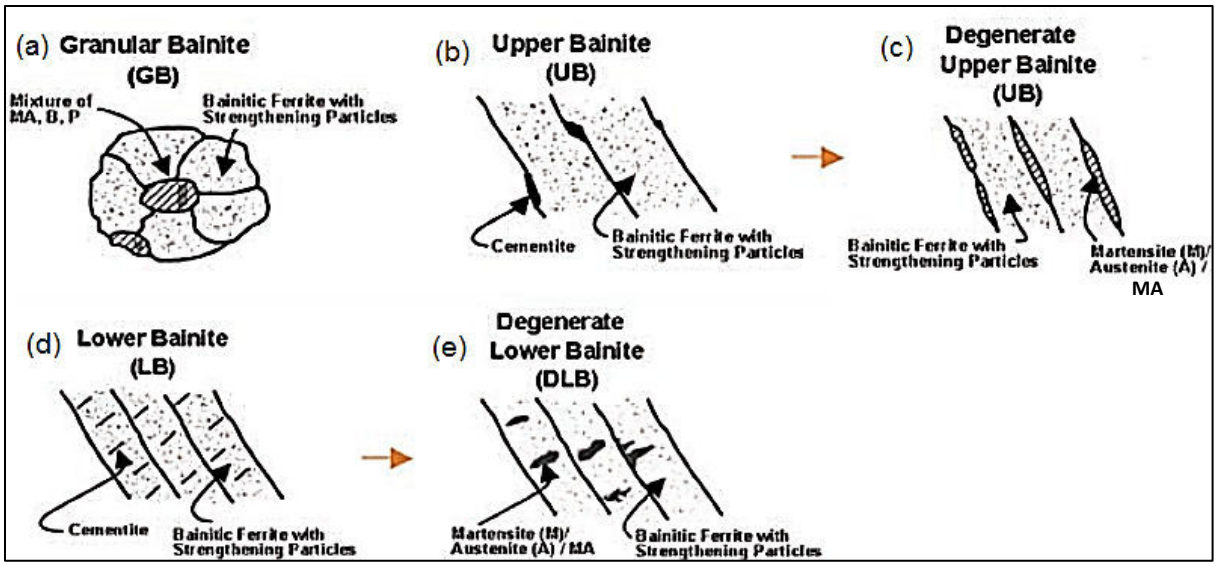


Fig.I.10 : Représentation schématique des microstructures bainitiques selon la classification morphologique de Zajac et al. (a) bainite granulaire (b) bainite supérieure (c) bainite supérieure dégénérée (d) bainite inférieure (e) bainite inférieure dégénérée. Figure tirée de [22].

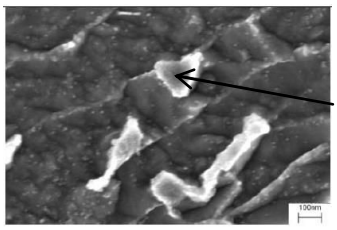


Fig.I.11 : Micrographie MEB après attaque de la microstructure bainitique inférieure dégénérée selon la classification de Zajac et al., obtenue dans un alliage X120. La flèche indique un îlot MA. Figure tirée de [22].

I.6. Le cas de la bainite granulaire

Quelle que soit la classification considérée, les bainites lamellaires ou aciculaires sont en général bien décrites. Par contre, le concept de bainite granulaire n'est pas clairement défini dans la littérature (sauf peut-être dans l'approche de Zajac et al. comme le montre la figure 1.10). On pourrait l'associer aux formes (a), (b) ou (e) de la classification d'Aaronson par exemple. Dans les travaux de Bramfitt, elle est plutôt associée à de la ferrite quasi-polygonale [21]. Cette forme de bainite est souvent observée dans les aciers bas-carbone. D'après Bhadeshia [6], mais aussi Krauss et al. [23], il est possible de l'obtenir uniquement par refroidissement continu.

Qualitativement, la bainite granulaire est définie comme étant des grains de ferrite irréguliers, de morphologie sphéroïdale, pouvant contenir diverses secondes phases (débris de cémentite, perlite dégénérée, martensite et îlots M/A) [22]. Selon Habraken et al., la bainite granulaire consiste en une combinaison de ferrite entièrement granulaire, ou de lattes larges, avec des ilots de martensite ou d'austénite résiduelle [24-27]. D'après ces auteurs, une des caractéristiques de la bainite granulaire est l'absence des carbures. En revanche, une bainite granulaire contenant de la cémentite a été mise en évidence suite au refroidissement continu [28].

I.7. Système de classification du comité de la bainite ISIJ (Bainite Committee of Iron and Steel Institute of Japan)

Les travaux de ce comité se sont intéressés aux aciers bas-carbone et très bas-carbone et ont essayé de décrire toutes les morphologies possibles de la ferrite observées dans ces aciers tout en leur associant des terminologies spécifiques [29]. Le tableau I.3 présente ces terminologies.

Symbol	Nomenclature
I_0 Major matrix-phase	
α_p	Polygonal ferrite
α_q	Quasi-polygnal α
α_w	Widmanstätten α
α_B	(Granula bainitic) α
α°_B	Bainitic ferrite
α'_m	Dislocated cubic martensite
II_0 Minor secondary phases	
γ_r	Retained austenite
MA	Martensite-austenite constituent
α_M	Martensite
aTM	Auto-tempered martensite
B	BII, B2: upper bainite
	Bu: upper bainite
	B_L: lower bainite
P´	Degenerated pearlite
P	Pearlite
θ	Cementite particle

Tab.I.3 : Les symboles et nomenclatures associées aux microstructures à matrice ferritique d'après le comité ISIJ Bainite Committee.

Cette classification peut être utile pour caractériser les différentes morphologies de ferrite rencontrées dans les aciers bas-carbone, mais elle a également ses inconvénients. Par exemple, elle ne considère pas la bainite inférieure ni supérieure comme des constituants majeurs dans ce type d'aciers, mais plutôt comme étant des phases secondaires. Ceci est en contradiction par exemple, avec les travaux de Asahi et al. [30] qui ont montré que la bainite inférieure représente la phase constituante majeure de plusieurs aciers pour pipelines à haute résistance contenant 0.04 à 0.06%C.

De plus, le terme « ferrite bainitique » peut représenter une source de confusion puisqu'il décrit dans ce contexte, une morphologie de ferrite en lattes parallèles contenant une forte densité de dislocations et comportant des îlots MA inter-lattes. Cette morphologie est proche de la bainite de type BI selon la classification d'Ohmori [19], B_2^m selon la classification de Bramfit et Speer [21], et la bainite supérieure dégénérée selon la classification de Zajac [22]. Par ailleurs, ce terme « ferrite bainitique » est souvent utilisé pour décrire la matrice ferritique (Cubique Centrée CC ou Tétragonale Centrée TC) dans les bainites conventionnelles (inférieure et supérieure) de Mehl [9].

I.8. Conclusion

Les microstructures bainitiques ont toujours suscité des controverses, non seulement concernant leur mécanisme de formation, mais aussi vis-à-vis de leur classification. En effet, cette courte analyse bibliographique révèle que les chercheurs n'arrivent pas à s'accorder sur une seule et même classification, le pire étant que certaines définitions sont même incompatibles. Ce constat est d'autant plus vrai concernant la bainite granulaire. Dans la prochaine section, nous allons montrer comment un point de vue cristallographique permet de proposer une nouvelle famille de classification et peut-être de mieux relier les microstructures à leurs conditions de transformation.

II. Cristallographie des structures bainitiques

Un certain nombre de phases ferritiques, issues de la décomposition de l'austénite au refroidissement dans les aciers, présentent une relation cristallographique non aléatoire avec leur austénite mère. On appelle cette relation cristallographique une Relation d'Orientation (RO). Elle engendre des interfaces particulières entre les réseaux cristallins. Ces RO sont présentes dès la germination de la phase fille car elles requièrent des forces motrices plus faibles (énergies d'interface, énergie élastique stockées). La phase fille a ensuite la possibilité de croître dans le grain austénitique avec lequel elle est en relation, comme c'est le cas de la martensite ou de la bainite.

Dans ces deux cas de décomposition de l'austénite, une RO est caractérisée par les coïncidences entre un plan et une direction de l'austénite et de la phase ferritique fille respectivement, que l'on peut résumer comme suit :

$$(hkl)_\gamma \,//\, (h'k'l')_\alpha \text{ et } [uvw]_\gamma \,//\, [u'v'w']_\alpha$$

Cette même RO correspond à une rotation, symbolisée Δg (matrice 3x3), qui met en coïncidence le repère du cristal parent et celui du cristal hérité. Si l'on adopte une représentation vectorielle des désorientations, le produit de la RO et de chaque élément de symétrie du réseau cubique de l'austénite P_i (matrice 3x3) {i=1..24}, conduit à une orientation différente possible, g_F^i (vecteur 3x1), de la phase héritée par rapport au cristal parent d'orientation g_p (vecteur 3x1). Ces combinaisons possibles de transformations géométriques sont nommées variants cristallographiques. Autrement dit, un même grain austénitique peut possiblement se retrouver décomposer en domaines ferritiques de 24 orientations cristallographiques différentes.

$$g_F^i = \Delta g . P_i . g_p \quad \{i=1..24\} \quad (I.1)$$

En pratique, les 24 variants ne sont pas toujours présents dans un même grain austénitique de départ ; il s'opère une sélection de variants lors de la transformation.

Dans cette partie, nous nous restreindrons à l'étude des ROs entre ferrite et austénite et nous reviendrons sur celles les plus communément observées expérimentalement dans les structures bainitiques et martensitiques des aciers. Ensuite, nous discuterons des moyens de les mettre en évidence. En effet, il est relativement aisé d'identifier cette relation en présence d'austénite mère résiduelle (approche directe). Dans le cas contraire, il faut se baser sur les désorientations entre les domaines ferritiques, ce qui requiert une analyse inverse souvent fastidieuse. Ce travail présente une difficulté supplémentaire associé aux dispersions de RO à cause de la déformation plastique dans les phases mères. Enfin, nous achèverons cette partie en montrant que la distribution des variants dans les microtextures héritées selon ces ROs, peuvent servir de base aussi à une classification des microstructures bainitiques.

II.1. Relations d'orientation dans les structures martensitiques et bainitiques

II.1.1. Relation de Bain

En 1924, Bain [31] propose un mécanisme de transformation structurale de l'austénite en martensite par une déformation homogène du réseau de l'austénite. La figure I.12 montre cette transformation : au sein du réseau CFC de l'austénite, on identifie une maille quadratique centrée qui est transformé en une maille CC par une compression selon une direction [001] et des dilatations dans les autres directions <001>.

La RO proposée par Bain entre le réseau de l'austénite et le réseau de la martensite est donc la suivante :

$$(100)_\gamma \,//\, (001)_\alpha \quad \text{et} \quad [100]_\gamma \,//\, [1\bar{1}0]_\alpha$$

La correspondance de Bain revient à faire une rotation de 45° autour d'un axe $[001]_\gamma$ pour passer de l'orientation du cristal austénitique à celle d'un cristal ferritique. Si l'on se restreint à cette rotation, les 24 variants α sont confondus par groupe de 8 et seuls trois variants α distincts sont observables, compte tenu des symétries cristallines.

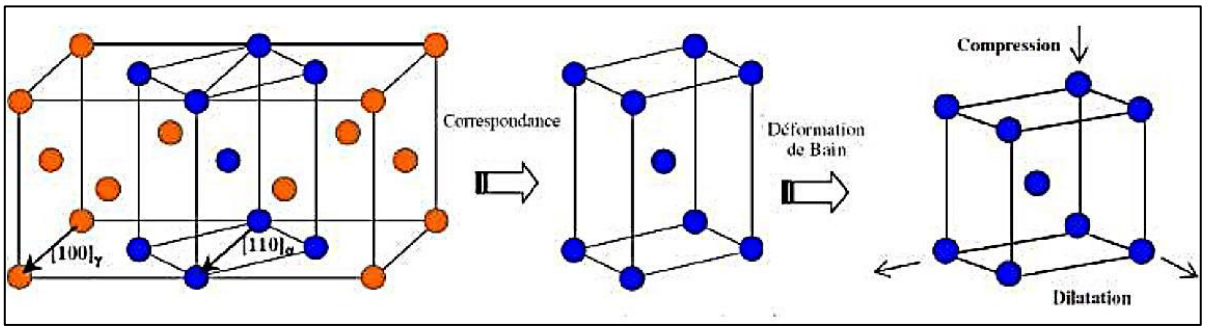


Fig.I.12 : Représentation schématique de la transformation dite de Bain pour passer d'une structure austénitique à une structure ferritique, tirée de [32].

En pratique, cette RO n'est pas observée. En fait la déformation de Bain (exprimée par le tenseur de Bain donné figure I.13) ne permet pas de conserver un plan invariant (plan d'habitat de la transformation martensitique) et donne donc lieu à une énergie élastique trop importante.

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} \epsilon_0 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_0 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_0' \end{pmatrix}$$

$$\epsilon_0 = \frac{\sqrt{2}a_{\alpha'} - a_\gamma}{a_\gamma} \qquad \epsilon_0' = \frac{a_{\alpha'} - a_\gamma}{a_\gamma}$$

Fig. I.13 : Tenseur décrivant la déformation de Bain à partir des paramètres de maille de l'austénite et de la martensite

II.1.2. Les relations classiques : KS, NW, GT et Pitsch

Suite aux travaux pionniers de Bain, plusieurs groupes de chercheurs ont proposé des ROs plus élaborées permettant une meilleure description de leurs observations expérimentales des transformations austénite/ferrite. Les plus communément identifiées sont celles de Kurdjumov-Sachs [36] notée KS, de Nishiyama-Wassermann [37, 38] notée NW, de Pitsch [39], et de Greninger-Troiano [40] notée GT. Ces relations d'orientation sont décrites dans le tableau I.4. On notera que ces ROs se basent sur des directions et des plans cristallographiques différents, et conduisent donc à des nombres de variants possibles différents.

Comme les ROs conduisent à des rotations différentes pour passer du réseau CFC au réseau CC, les variants théoriques produits sont nécessairement désorientés entre eux. On peut donc calculer l'angle de désorientation théorique minimal séparant les variants de deux ROs. Le tableau I.5 tiré de [41] rassemble ces angles pour des ROs prises deux par deux parmi Bain,

KS, NW et Pitsch. Plus classiquement, la figure I.14.a montre la figure de pôles $\{100\}_\alpha$ théorique des variants issus de ces relations d'orientation, dans le repère du grain parent en projection stéréographique.

Relations d'orientation	Plans parallèles	Directions parallèles	Nombre de variants
Bain	$\{100\}_\gamma$ // $\{100\}_\alpha$	$<100>_\gamma$ // $<110>_\alpha$	3
Kurdjumov-Sachs (KS)	$\{111\}_\gamma$ // $\{110\}_\alpha$	$<110>_\gamma$ // $<111>_\alpha$	24
Nishiyama-Wassermann (NW)	$\{111\}_\gamma$// $\{110\}_\alpha$	$<211>_\gamma$ // $<110>_\alpha$	12
Pitsch	$\{100\}_\gamma$ // $\{110\}_\alpha$	$<110>_\gamma$// $<111>_\alpha$	12
Greninger-Troiano (GT)	$\{111\}_\gamma$ à 1° de $\{110\}_\alpha$	$<211>_\gamma$ à 2.5° de $<110>_\alpha$	24

Tab.I.4 : Relations d'orientation entre les réseaux CFC et CC les plus communément observées expérimentalement et discutées dans la littérature.

Pour la relation de KS, il existe quatre possibilités de plans denses de la famille $\{111\}_\gamma$ et trois possibilités de directions denses $<110>_\gamma$ par plan dense, qui ont chacune deux possibilités d'être parallèle à une direction $<111>_\alpha$. Pour la relation de NW, il existe quatre possibilités de plans denses de la famille $\{111\}_\gamma$ et trois possibilités de directions denses $<211>_\gamma$ par plan dense, qui ont une possibilité d'être parallèle à une direction $<110>_\alpha$. Le même raisonnement donne 12 variants pour la relation de Pitsch et 24 variants pour celle de GT.

	Bain	KS	NW	Pitsch
Bain	-	11.07°	9.74°	9.74°
KS	11.07°	-	5.26°	5.26°
NW	9.74°	5.26°	-	7.44°
Pitsch	9.74°	5.26°	7.44°	-

Tab.I.5 : Désorientations angulaires théoriques minimales entre variants des ROs de la transformation CFC → CC (angle de rotation minimale permettant de passer d'une structure ferritique fille possible d'une RO donnée à une autre) d'après [41].

La figure I.14 montre que les quatre RO (KS, GT, NW et Pitsch) conduisent à des variants finalement peu éloignés de la prédiction de Bain. Ils peuvent s'en déduire par une rotation de corps rigide d'au maximum 11.07°. On dit alors que les variants hérités de ces ROs sont situés dans la région de Bain, définie dans l'espace des orientations à moins de 11.07° des variants de Bain. Un de ces domaines restreints de la figure de pôles (a) est représenté sur la figure I.14.b. On peut également noter que le passage de la relation de KS à la relation de NW s'effectue par une rotation de 5.26° autour de la normale commune aux plans $(111)_\gamma$ et à $(101)_\alpha$. Tandis que la relation de GT est une relation intermédiaire entre celle de KS et celle de NW.

Pour une RO donnée maintenant, des désorientations spécifiques entre variants ferritiques d'un même grain austénitique sont données dans le tableau I.6 sous la forme de couples Axe/Angle. Ces couples ont été calculés théoriquement. Ce tableau est très important en pratique car ces désorientations entre variants sont les seules caractéristiques mesurables en microscopie électronique à balayage, et donc les seuls « vestiges » de la RO entre austénite parente et variants ferritiques.

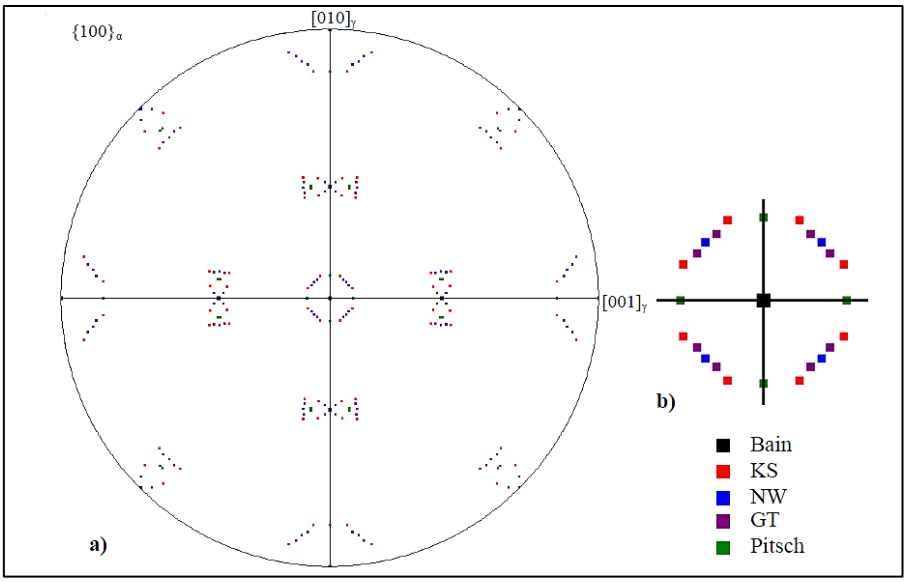


Fig.I.14 : (a) Figure de pôles $\{100\}_\alpha$ des variants hérités de Bain, KS, NW, Pitsch et GT dans le repère de l'ancien grain parent, (b) zoom sur une région dite de Bain (d'après [42])

Désorientations spécifiques entre variants potentiels selon KS (axe-angle)			
x	y	z	θ(°)
0	0.7071	0.7071	10.53
-0.5774	-0.5774	0.5774	10.53
0.9329	0.3543	0.065	14.88
-0.6589	0.6589	0.3628	20.61
-0.9551	0	0.2962	20.61
0.9121	-0.41	0	21.06
-0.3022	0.6255	0.7193	47.11
0	0.7071	0.7071	49.47
-0.5774	-0.5774	0.5774	49.47
0.6145	-0.1862	0.7666	50.51
-0.7387	-0.4625	0.4904	50.51
0.6589	-0.3628	0.6589	51.73
0.2461	0.6278	0.7384	57.21
-0.3568	0.6029	0.7136	57.21
0	0.7071	0.7071	60
-0.5774	-0.5774	0.5774	60

Désorientations spécifiques entre variants selon GT (axe-angle)			
x	y	z	θ(°)
-0.6658	0	0.7461	5.04
0.6858	-0.6858	0.2438	11.2
-0.5449	0.8364	0.0589	13.49
-0.6828	-0.6828	0.2599	16.2
0	-0.986	0.1668	19.05
0.2065	0.9784	0	19.08
0.5111	-0.6078	0.6078	49.82
0.4606	0.5641	0.6853	50.62
-0.667	-0.2571	0.6992	50.7
0.4145	0.6435	0.6435	51.43
0.2109	0.6486	0.7313	52.55
-0.7071	-0.0095	0.7071	54.97
0.2372	-0.712	0.6609	55.59
0.1986	0.6637	0.7212	57.46
-0.7105	-0.011	0.7037	60
0.526	-0.5453	0.6527	60.2

Désorientations spécifiques entre variants selon NW (axe-angle)			
x	y	z	θ(°)
0.0601	0.7058	0.7058	13.76
0	0	1	19.47
0.6239	-0.4705	0.6239	50.05
0.6973	-0.2227	0.6813	53.69
-0.7071	-0.7071	0	60

Tab.I.6 : Désorientations spécifiques entre variants selon les ROs de KS, NW et GT, calculées théoriquement d'après [43].

Une autre caractéristique importante d'une transformation à caractère martensitique est le plan d'habitat. Expérimentalement, on observe que le plan d'habitat va dépendre fortement de la morphologie de la martensite (et donc de sa teneur en carbone). Le tableau I.7 présente quelques exemples de familles de plan d'habitat observés dans diverses martensites.

Composition /wt.%	Approximate habit plane indices
Low–alloy steels, Fe–28Ni	$\{1\ 1\ 1\}_\gamma$
Plate martensite in Fe–1.8C	$\{2\ 9\ 5\}_\gamma$
Fe–30Ni–0.3C	$\{3\ 15\ 10\}_\gamma$
Fe–8Cr–1C	$\{2\ 5\ 2\}_\gamma$

Tab.I.7: Plans d'habitat observés dans différents aciers martensitiques. Il s'agit de valeurs approximées car il n'y a jamais de correspondance parfaite entre les réseaux cristallins [6].

Dans le cas de la martensite en lattes (%C≤0.8), Kelly [33] trouve que tous les plans d'habitat mesurés expérimentalement sont proches de $\{557\}_\gamma$ et $\{223\}_\gamma$ (à 9-12° de $\{111\}_\gamma$). Pour la bainite supérieure, Lambert-Perlade et al. observent ces mêmes plans d'habitat $\{557\}_\gamma$ et $\{223\}_\gamma$ [34]. Pour la bainite inférieure, Sandvik trouve un plan d'habitat irrationnel de (0.373, 0.663, 0.649) dans un acier Fe-0.76%C-2.4%Si [35].

Les théories phénoménologiques de la transformation martensitique modélisent le lien entre les aspects cristallographiques et macroscopiques de la transformation de phase. Elles décrivent le changement de réseau de l'austénite vers la martensite par une distorsion dite de Bain notée « B » (figures I.12 et I.13) correspondant au minimum de distorsion. Ce changement de réseau induit des contraintes internes en raison de la présence des deux phases. Un mécanisme d'accommodation à réseau invariant P soit dans l'austénite, soit dans la martensite (glissement plastique ou maclage) permet l'existence d'un plan non distordu entre les deux phases (plan invariant) et la relaxation des contraintes. Il est de plus nécessaire d'introduire une rotation solide R pour que le plan non distordu soit non tourné par la transformation. Ce plan constitue un plan d'habitat entre les deux phases. La succession de ces opérations est schématisée figure I.15.

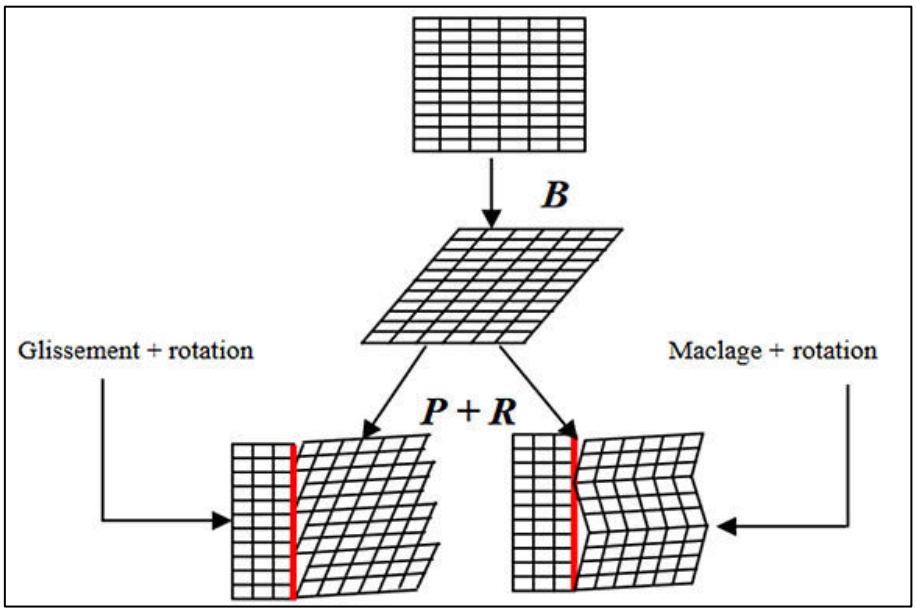


Fig.I.15 : Décomposition schématique de la déformation de transformation en trois mécanismes élémentaires

II.1.3. Relations d'Orientation observées en pratique

Les progrès en MEB ont permis une caractérisation plus approfondie des désorientations dans différents aciers martensitiques et bainitiques. Il s'est avéré que plusieurs groupes de chercheurs ont montré que les ROs classiques décrites précédemment ne permettaient pas non plus d'expliquer l'ensemble de leurs observations, ou en tout cas pas de manière unique.

Une relation proche de KS, sans que cette dernière ne soit suivie strictement, a été observée pour la transformation martensitique d'aciers bas-carbone faiblement alliés [44, 45], pour des aciers fortement allié au chrome/molybdène (~10%Cr, 1%Mo) [46,47] et pour des aciers inoxydables austénitiques (AISI 301) [48]. Humbert et al. [49, 50] ont étudié la RO entre la bainite et l'austénite mère pour des aciers HSLA (High Strength Low Alloy à bas carbone 0.05%C). Ils notent que la RO de KS prédomine mais qu'elle n'est pas suivie dans 100% des cas analysés ; certaines zones analysées montrant des ROs plus proches de celle de NW.

Plusieurs auteurs observent une relation proche de KS ou de NW pour la bainite des aciers TRIP (Transformation Induced Plasticity) [32, 51, 52]. Les travaux de Zaefferer et al. [53] montrent par exemple une RO entre la bainite et l'austénite résiduelle très proche de KS avec des dispersions entre 1 et 2° autour de la RO, dans un acier TRIP de composition Fe-0.2%C-1.4%Mn-0.5%Si-0.7%Al.

Kelly et al. [54] observent une relation proche de GT, donc une relation intermédiaire entre KS et NW pour deux aciers Fe-0.1%C-2%Si et Fe-0.3%C-3%Cr-2%Mn-0.5%Mo. En comparant l'orientation de l'austénite résiduelle à l'orientation de la martensite adjacente, une dispersion moyenne de 2,5° est mesurée autour de la RO de KS. De même, Miyamoto et al. observent une RO proche de GT pour des aciers bas-carbone faiblement alliés [55].

Il apparait donc que l'on puisse observer dans les microstructures bainitiques ou martensitiques, une grande variété de scénarios en fonction des compositions et des traitements thermiques. A l'heure actuelle, il n'existe aucun schéma réellement explicatif dans la littérature qui permet à minima d'anticiper la RO précise d'une transformation bainitique donnée. Dans ce contexte, on notera les travaux du groupe de C. Cayron à l'EPFL qui développe une approche continue de la transformation martensitique au niveau atomique, propre à décrire l'ensemble des RO à l'aide d'un seul paramètre [56].

II.1.4. Techniques et méthodes de détermination des relations d'orientation

Différentes méthodes sont utilisées pour déterminer la RO entre l'austénite et les produits de transformation. Elles requièrent différentes techniques expérimentales dont nous allons discuter des résolutions respectives. Elles peuvent être directes s'il reste de l'austénite mère dans la microstructure finale, ou indirectes si seuls les produits de décomposition ferritiques, les variants, peuvent être observés.

II.1.4.1. Techniques expérimentales et résolution angulaire

Ces méthodes exploitent différentes techniques et dispositifs expérimentaux de mesures d'orientations cristallographiques basées sur la diffraction d'un rayonnement X (conventionnel ou synchrotron), des neutrons ou des électrons (clichés de points au MET, diagramme de Kikuchi au MEB ou au MET) [36,53,54,57,58]. Chaque technique/dispositif expérimental n'offre cependant pas la même précision de mesure d'une désorientation. Comme les différentes ROs dans les aciers sont proches, il est important de privilégier les techniques qui offrent la meilleure résolution angulaire. A notre connaissance, la mesure d'orientation la plus précise est obtenue en diffraction des RX sur ligne synchrotron. Dans ce cas, la précision angulaire atteinte est de 0.1° [57]. Ensuite on trouve l'indexation des figures

de Kikuchi. Cette technique donne, en fonction des conditions de mesure, une précision entre 0.1 et 0.5° au MET [59] et une précision entre 0.1 et 1° au MEB [60,61]. L'analyse de clichés de diffraction au MET, la diffraction X conventionnelle ou de neutrons, sont les techniques les moins précises en termes de mesure d'orientation, avec une précision angulaire de 1° à 2° [62].
Par ailleurs, certaines méthodes ou techniques de détermination des ROs sont très locales, d'autres sont davantage adaptées à la recherche d'une RO moyenne au sein du polycristal. Par conséquent, les différents résultats obtenus sur un même matériau ou une même structure avec différentes techniques sont difficilement comparables. Ce qui est aussi une explication possible à la diversité des ROs observées expérimentalement.

II.1.4.2. Méthodes directes

La mesure peut être effectuée à une échelle locale, en comparant l'orientation d'un cristal de la phase héritée avec l'orientation d'un cristal voisin d'austénite mère [53, 55]. Un exemple de mesure directe est discuté sur la figure I.16. Les orientations respectives des lattes de martensite et des films d'austénite résiduelle adjacents sont déterminées par diffraction au MET. Les relations trouvées entre les deux structures sont : $(111)_\gamma$ // $(101)_\alpha$ à ± 1°/2° de précision et un angle 2.5° ± 2° entre $[1\bar{1}0]_\gamma$ et $[11\bar{1}]_\alpha$. Ces relations sont celles qui définissent la RO de GT.

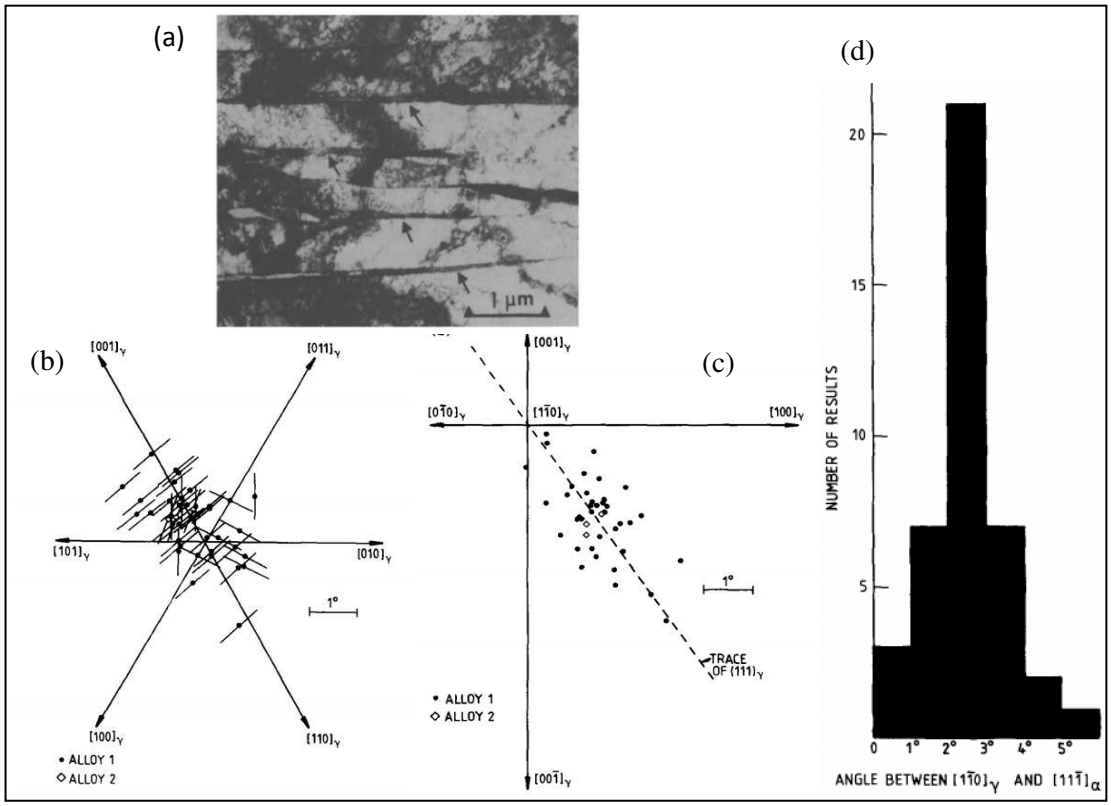


Fig.I.16 : (a) Micrographie MET des lattes de martensite et austénite résiduelle analysées. Les films d'austénite apparaissent en contraste sombre et sont repérés par des flèches (b) Position de la normale au plan $(101)_\alpha$ par rapport à $(101)_\gamma$. Les barres d'erreur à 1/2° sont dues aux imprécisions de mesure angulaire des clichés (c) Position de la direction $[11\text{-}1]_\alpha$ par rapport à $[1\text{-}10]_\gamma$ (d) Histogramme des angles observés entre $[11\text{-}1]_\alpha$ et $[1\text{-}10]_\gamma$ dont la valeur moyenne est 2.5°. Résultats tirés de [55].

II.1.4.3. Méthodes indirectes

Dans les aciers bas-carbone, la phase austénitique parente est souvent absente à température ambiante après transformation martensitique ou bainitique. Dans ce cas, le calcul de la RO peut se faire à partir de l'analyse des désorientations entre variants hérités d'un même parent.

En effet pour une RO stricte donnée, il existe un nombre fini de désorientations possibles entre variants hérités d'un même grain parent (cf. tableau I.7).

La détermination de la RO peut s'effectuer à l'échelle d'un ancien grain parent, en comparant les figures de pôles (ou la fonction de densité des orientations FDO) de la phase héritée aux figures de pôles (ou FDO) simulées. Le résultat de la simulation s'obtient en partant d'une RO connue et en faisant varier l'orientation du grain austénitique jusqu'à coïncidence avec le résultat expérimental [52, 63, 64]. La figure I.17 montre la figure de pôles expérimentale des plans (100) de la ferrite bainitique héritée d'un même grain austénitique et la figure reconstituée à partir de l'orientation supposée de l'austénite et du choix de certaines ROs (en l'occurrence KS et NW). L'analyse a été réalisée sur un acier 0.07%C-0.32%Si-1.5%Mn-0.16%Cu-0.12%Mo-0.014%Nb-0.002%V par Lambert-Perlade et al. [34], où l'orientation de la phase fille a été déterminée par EBSD au MEB. Selon les auteurs, cette méthode permet de déterminer l'orientation parente avec une précision de 0.5° sur chacun des angles d'Euler mais elle requiert de définir visuellement l'ancien grain austénitique (ce qui n'est pas toujours évident).

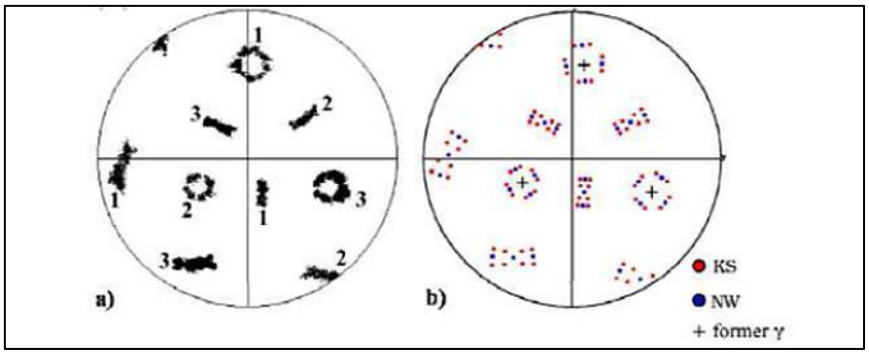


Fig.I.17 : (a) Figure de pôles $(100)_{\alpha}$ de la bainite héritée du même parent austénitique (b) Orientations théoriques des variants KS et NW calculées à partir de l'orientation supposée du parent [34].

Une autre approche indirecte consiste à utiliser les désorientations entre cristaux de la phase fille pris deux à deux [65,66]. Comme expliqué dans le tableau I.7, chaque RO induit des désorientations spécifiques entre variants ; 16 désorientations spécifiques pour la RO de KS et 5 pour celle de NW [45] par exemple. On remarque cependant, que certaines désorientations sont communes aux deux RO et ne permettent donc pas de les distinguer (par exemple 60° <110>). Par contre la désorientation de 60° <111> entre variants hérités du même parent est spécifique à KS.

La principale difficulté de cette seconde analyse indirecte est qu'il est aussi souvent difficile de déterminer avec certitude la position du grain austénitique parent. Il faut donc faire appel à des techniques de reconstruction des anciens joints de grains austénitiques. La plupart des techniques de reconstruction repose sur le principe de base énoncé par Humbert et al. [67]. Il consiste à comparer la désorientation expérimentale entre deux domaines cristallographiques voisins à celle théorique existant entre deux variants issus du même grain parent et calculée en fonction de la RO ainsi que des éléments de symétrie associés aux deux phases mère et fille. Si les désorientations théoriques et expérimentales sont proches, les variants ont une forte probabilité d'être hérités du même grain austénitique.

On réalise souvent ce type de reconstruction sur des cartographies EBSD car les zones analysées comprennent un nombre suffisant de grains austénitiques. Ainsi, on est capable d'évaluer la carte EBSD d'une phase mère à partir d'une carte EBSD mesurée à température ambiante après transformation de phase. Suite à ces travaux précurseurs, afin d'automatiser ce travail, différents logiciels de reconstruction ont été développés, en particulier MERENGUE2

au LEM3 par L. Germain [68]. Il permet une reconstruction automatisée se déroulant en cinq étapes : la reconnaissance des grains, la mesure de la RO, l'identification de fragments de parent fiables, l'élargissement des fragments et enfin la gestion des ambiguïtés. Le fonctionnement de ce logiciel que nous avons utilisé et les hypothèses sous-jacentes seront détaillés au Chapitre II § V.

II.1.5. Evolution locale de la RO : Dispersions

Comme nous l'avons vu précédemment, il n'existe pas a priori de règles établies pour prévoir la RO suivie par une transformation martensitique ou bainitique. Il apparait aussi que sur un même échantillon, on observe rarement une RO unique à température ambiante. Des dispersions existent dans la plupart des cas et peuvent être dues à plusieurs facteurs [69]. La RO stricte peut être suivie localement en début de transformation de phase, mais peut évoluer soit au cours de la transformation ou lors du refroidissement. Les origines de ces dispersions sont d'après [69] :

- Les contraintes locales ou la rotation et la déformation plastiques dans l'austénite non transformée, survenues lors de la transformation ou lors du refroidissement
- l'évolution de la microstructure après transformation (restauration)

Les travaux de Sato et Zaefferer [70] ont contribué à l'étude du premier facteur de dispersion par exemple. A travers l'analyse en EBSD d'une martensite de type papillon dans un alliage Fe-30%Ni, ils ont montré que la martensite germe en RO de KS avec l'austénite (à l'extérieur du v) et que la déformation de transformation est accommodée dans l'austénite par de multiples glissements, visibles dans la figure I.18.a. Avec l'abaissement de la température et la poursuite de la transformation, l'accommodation de la déformation se fait par un ou deux systèmes de glissement (pour garantir la continuité cristallographique au niveau du plan d'habitat). Les dislocations d'accommodation sont alors responsables d'une déviation de l'orientation de l'austénite. Elles se transmettent dans la martensite avec l'épaississement de l'aiguille et conduisent à la rotation du réseau ferritique. C'est donc l'accommodation de la déformation de transformation qui est responsable ici de la dispersion de la RO.

Grâce à l'analyse des diagrammes de Kikuchi en EBSD, Miyamoto et al. [55] ont aussi montré que la déformation de transformation associée à la formation de la martensite en lattes est partiellement accommodée par une déformation plastique dans la matrice austénitique, cette déformation plastique étant accumulée dans l'austénite adjacente principalement sur un côté de la latte.

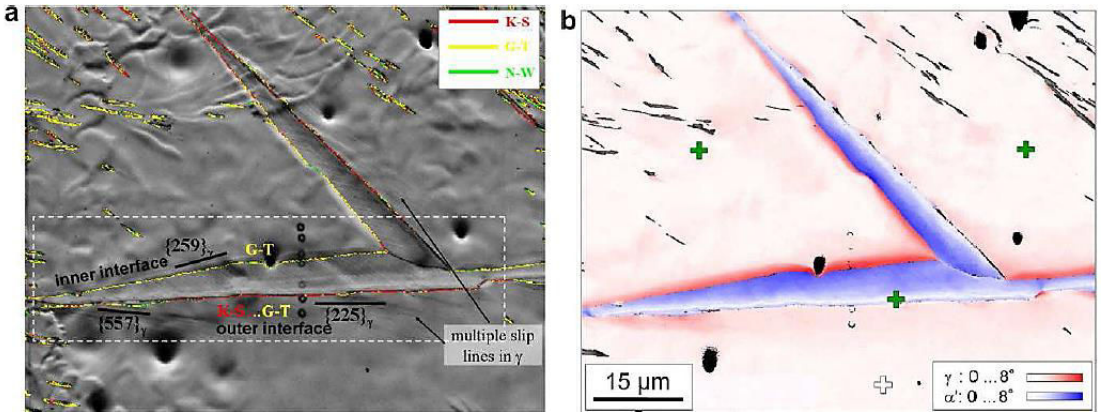


Fig.I.18 : Carte d'orientation d'une microstructure martensitique α' de type papillon dans une matrice austénitique γ obtenue par EBSD, (a) Cartographie des RO le long de l'interface α'- γ (superposée à l'image en contraste de bandes), (b) Gradients d'orientations cumulés dans α' et γ, calculés par rapport aux croix pour chaque zone. Figures tirées de [70].

II.2. Microtextures bainitiques et classifications cristallographiques associées

Dans la première partie de ce chapitre bibliographique, nous avons abordé la classification des bainites d'un point de vue morphologique (forme des phases) et topologique (distribution spatiale des phases). Nous allons voir dans ce qui suit, comment la notion des désorientations spécifiques engendrées par la RO a permis d'établir de nouvelles classifications de bainites sur des bases cristallographiques. Nous nous intéresserons en particulier aux bainites dites en lattes, c'est-à-dire de morphologie lamellaire ou aciculaire, et aux bainites granulaires.

II.2.1. Description multi-échelle et hiérarchique des microstructures en lattes

Les bainites en lattes que nous avons décrites en section I par la morphologie et la distribution de seconde phase, peuvent être analysées du point de vue des microtextures, c'est-à-dire des désorientations entre les domaines cristallins de la ferrite.

Les bainites en lattes, au même titre que la martensite en lattes, possèdent des structures cristallographiques organisées à différentes échelles et de manière hiérarchique [71]. L'échelle la plus fine est celle des lattes (voire des sous-unités si besoin) que nous venons de définir. L'échelle la plus grande est celle des anciens grains austénitiques (en anglais, on retrouve souvent l'acronyme PAGs pour Prior Austenite Grains) dont la taille moyenne est de l'ordre de la dizaine de microns généralement. Au sein d'un PAG, la structure est organisée en paquets, divisés en blocs, composés à leur tour de sous-blocs, termes que nous allons définir.

Un paquet est un regroupement de lattes voisines, partageant un même plan d'habitat de l'austénite [72] [73]. Cela signifie que les directions longues des lattes aciculaires du paquet considéré sont approximativement parallèles à un même plan $\{111\}_\gamma$. Cette notion de plan d'habitat est donc à la fois cristallographique et morphologique comme nous l'avons précisé au paragraphe II.1.1. Le PAG est donc fragmenté en quelques paquets qui constituent la seconde échelle à considérer. Ces paquets comportent au maximum six variants issus de la RO avec l'austénite mère (les six variants possibles conduisant à des plans d'habitat très proches de {111}). Au sein d'un même paquet, on peut définir des blocs, c'est-à-dire des regroupements de lattes faiblement désorientées entre elles. Les blocs sont par contre fortement désorientés entre eux, avec des angles de désorientation supérieurs à 45° (en majorité 60°). Cela signifie que les lattes de deux différents blocs appartiennent à des variants fortement désorientés [74] [75]. Comme il existe des variants faiblement désorientés entre eux (cf. tableau I.7), à l'intérieur d'un même bloc, on peut retrouver des lattes appartenant à des variants différents. Les sous-blocs regroupent donc les lattes adjacentes faiblement désorientées entre elles appartenant strictement au même variant.

La figure I.19 représente la sous-structure hiérarchique typique d'une structure martensitique (ou bainitique). Sont représentées, par échelle de taille décroissante, l'ancien grain austénitique, les paquets, les blocs, les sous-blocs, et finalement les lattes. En fonction des conditions de transformation, ces structures sont plus ou moins représentées. Dans ce qui suit, nous allons montrer comment la prédominance ou l'absence de ces segmentations a permis de classer les microstructures.

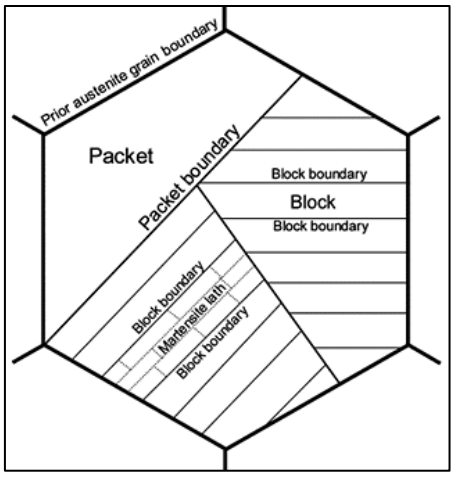


Fig.I.19: Organisation hiérarchique et multi-échelle des microstructures des martensites ou bainites en lattes. Sont définis par taille décroissante les anciens grains austénitiques, les paquets, les blocs, les sous-blocs et les lattes [76].

II.2.2. Les différentes classifications

Dès les années 2000, Gourgues et al. [45] ont étudié en EBSD les différences cristallographiques entre bainite supérieure, bainite inférieure et martensite d'un acier bas-carbone faiblement allié. Pour la bainite inférieure et pour la martensite, les auteurs observent la très forte présence de la désorientation spécifique 60° <111>. Cette désorientation est caractéristique de la relation de KS (cf. tableau I.7). Ces variants sont dits auto-accommodants car ils permettent de minimiser l'énergie de déformation lors de la transformation par compensation mutuelle de leur composante de cisaillement. Pour la bainite supérieure, la présence d'un pic de désorientation entre variants à 54° sur la distribution des désorientations, semble indiquer une RO plus proche de NW que de KS. De plus, les auteurs confirment qu'au sein des paquets de bainite supérieure, les lattes ne partagent pas nécessairement le même plan d'habitat et que les fortes désorientations de type 60° <111> y sont rarement observées. Dans ces travaux, l'organisation en sous-blocs n'est pas précisée. Ces travaux précurseurs mettent clairement en évidence que la RO et le nombre de variants dans un même grain austénitique dépendent de la température de transformation bainitique.

II.2.2.1. Classification cristallographique de Zajac et al. (2005)

Dans cet esprit, Zajac et al. ont proposé une classification de la bainite fondée sur la répartition des angles de désorientation des joints de ferrite bainitique incluant, pour la première fois, la bainite granulaire [22].

La bainite supérieure présente une forte proportion de joints faiblement désorientés (<20°) et peu de joints fortement désorientés (>50°). Le cas inverse est rencontré pour la bainite inférieure. Quant à la bainite granulaire, la distribution des angles de désorientation est aléatoire avec un pic diffus vers 45° et un pic minoritaire en dessous de 20° correspondant aux sous-blocs et aux lattes. Ces comportements typiques sont représentés schématiquement sur un histogramme de désorientation sur la figure I.20. Sur une telle représentation, que nous allons beaucoup utiliser par la suite, on représente la probabilité de trouver une désorientation angulaire donnée en fonction de l'angle de désorientation recherchée (sans nécessairement considérer l'axe de rotation). Si la structure présente une forte proportion de joints 60° <111> par exemple, on observera un pic à 60° comme dans le cas de la bainite inférieure selon Zajac et al.

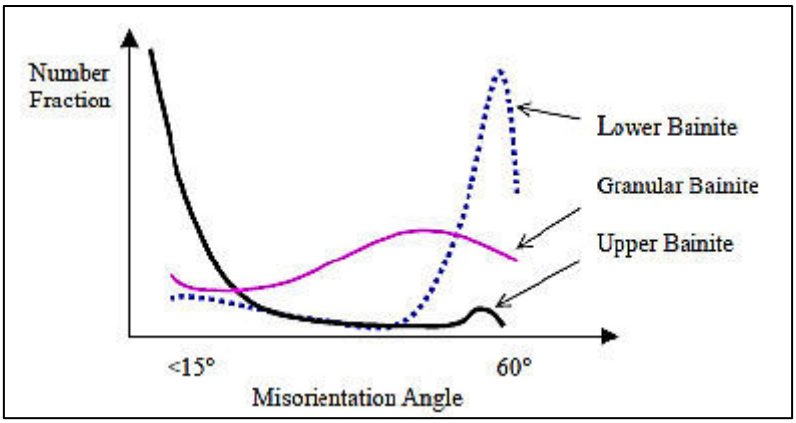


Fig.I.20 : Classification des structures bainitiques selon la distribution des angles de désorientations entre lattes. Figure tirée de [22].

II.2.2.2 Classification de Furuhara et al. (2006)

Dans leur classification, Furuhara et al. [75] proposent trois configurations possibles; une configuration de type A, une configuration de type B et une configuration de type C. Dans leur classification, ils ne considèrent que la bainite de type supérieure et la martensite. La bainite supérieure est de type A à haute température (450°C) et de type B ou C à basse température (350-400°C). Quant à la martensite, elle peut être de type B ou C et ce, en fonction du taux de carbone dans l'acier. La figure I.21 montre ces différents types en décrivant les arrangements des sous-structures de chacun.

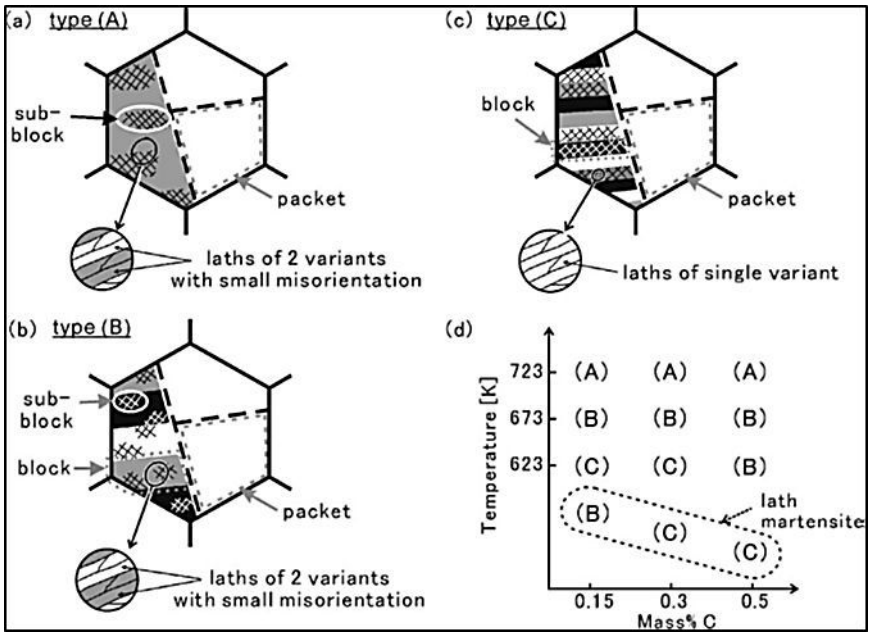


Fig.I.21: Caractéristiques cristallographiques des sous-structures de la bainite supérieure et de la martensite en lattes pour un acier Fe-9%Ni-(0.15-0.5)%C. Figure tirée de [75].

II.2.2.2 Classification de Takayama et al. (2012)

Plus récemment, Takayama et al. [77] ont étudié par EBSD des microstructures martensitiques et bainitiques obtenues à différentes températures sur un acier Fe-0.15%C-1.5%Mn-0.2%Si. Ils observent que les variants dans un même grain austénitique suivent des ROs déviées de KS, pour la martensite et les bainites quelle que soit la température. Les tableaux I.8 et I.9 présentent les ROs mesurées expérimentalement (sans présence d'austénite

résiduelle [55], tout en détaillant les désorientations spécifiques entre les variants et en les comparant avec celles héritées strictement de KS.

	Euler angle (ϕ_1, Φ, ϕ_2)	$\Delta\theta_{CPP}$	$\Delta\theta_{CPD}$
Martensite (Ms = 713 K)	(119.9°, 8.8°, 196.0°)	1.5° ± 0.2°	2.9° ± 0.1°
Bainite (723 K)	(119.0°, 8.9°, 197.3°)	1.4° ± 0.2°	2.6° ± 0.1°
Bainite (773 K)	(117.1°, 8.4°, 199.0°)	1.9° ± 0.4°	2.7° ± 0.2°
Bainite (853 K)	(111.9°, 7.7°, 204.3°)	2.9° ± 0.1°	2.7° ± 0.1°

Tab.I.8: Relation d'orientation et angles respectifs entre les plans $(111)_\gamma$ et $(110)_\alpha$ et les directions $[101]_\gamma$ et $[111]_\alpha$. Tableau tiré de [77].

	[Rotation axis]$_a$/rotation angle with respect to V1			
	K–S OR	Martensite	Bainite (723 K)	Bainite (853 K)
V1	–	–	–	–
V2	[−0.58, −0.58, 0.58], 60.0°	[−0.55, −0.52, 0.66], 60.3°	[0.52, 0.65, −0.56], 60.2°	[−0.59, −0.50, 0.63], 60.2°
V3	[0.00, 0.71, 0.71], 60.0°	[−0.52, 0.47, −0.72], 59.5°	[−0.52, 0.47, −0.72], 59.7°	[−0.55, 0.43, −0.72], 59.3°
V4	[0.00, −0.71, −0.71], 10.5°	[0.00, −0.90, −0.43], 5.1°	[0.00, −0.86, −0.51], 5.7°	[0.00, −0.91, −0.42], 6.6°
V5	[0.00, −0.71, −0.71], 60.0°	[0.47, 0.72, −0.52], 59.5°	[0.47, 0.72, −0.52], 59.7°	[0.43, 0.72, −0.55], 59.3°
V6	[0.00, 0.71, 0.71], 49.5°	[−0.06, 0.71, 0.71], 55.3°	[−0.05, 0.71, 0.71], 54.6°	[−0.11, 0.70, 0.70], 54.0°
V7	[−0.58, −0.58, 0.58], 60.0°	[−0.61, −0.51, 0.61], 52.4°	[−0.61, −0.51, 0.61], 52.2°	[−0.61, −0.49, 0.61], 54.4°
V8	[0.58, 0.58, −0.58], 10.5°	[0.70, 0.70, −0.14], 8.9°	[0.69, 0.69, −0.22], 8.8°	[0.67, 0.67, −0.33], 6.1°
V9	[−0.61, 0.19, −0.77], 50.5°	[−0.67, 0.21, −0.71], 52.7°	[−0.66, 0.21, −0.72], 52.6°	[−0.66, 0.22, −0.72], 53.4°
V10	[−0.74, −0.46, 0.49], 50.5°	[−0.68, −0.44, 0.58], 51.7°	[−0.69, −0.44, 0.57], 51.7°	[−0.70, −0.41, 0.58], 53.5°
V11	[0.93, 0.35, 0.07], 14.9°	[0.87, 0.49, 0.05], 12.5°	[0.88, 0.46, 0.05], 12.5°	[0.93, 0.35, 0.05], 10.9°
V12	[−0.36, 0.60, 0.71], 57.2°	[−0.66, 0.19, −0.73], 57.5°	[−0.66, 0.18, −0.73], 58.0°	[−0.34, 0.60, 0.73], 58.6°
V13	[0.35, −0.93, −0.07], 14.9°	[0.49, −0.87, −0.05], 12.5°	[0.46, −0.88, −0.05], 12.5°	[0.35, −0.93, −0.05], 10.9°
V14	[−0.49, 0.46, −0.74], 50.5°	[−0.58, 0.44, −0.68], 51.7°	[−0.57, 0.44, −0.69], 51.7°	[−0.58, 0.41, −0.70], 53.5°
V15	[−0.74, −0.25, 0.63], 57.2°	[−0.70, −0.25, 0.67], 56.9°	[−0.70, −0.25, 0.67], 57.1°	[−0.70, −0.26, 0.66], 59.0°
V16	[0.66, −0.66, −0.36], 20.6°	[0.70, −0.70, −0.16], 15.5°	[0.69, −0.69, −0.19], 15.8°	[0.69, −0.69, −0.19], 14.6°
V17	[−0.66, 0.36, −0.66], 51.7°	[−0.66, 0.38, −0.66], 51.1°	[−0.66, 0.37, −0.66], 51.5°	[−0.67, 0.33, −0.67], 53.0°
V18	[−0.72, −0.30, 0.63], 47.1°	[−0.70, −0.28, 0.65], 52.4°	[−0.70, −0.29, 0.65], 51.8°	[−0.71, −0.31, 0.63], 53.1°
V19	[−0.19, 0.77, 0.61], 50.5°	[−0.21, 0.71, 0.67], 52.7°	[−0.21, 0.72, 0.66], 52.6°	[−0.22, 0.72, 0.66], 53.4°
V20	[0.36, 0.71, −0.60], 57.2°	[−0.19, −0.73, −0.66], 57.5°	[−0.18, −0.73, −0.66], 58.0°	[0.34, 0.73, −0.60], 58.6°
V21	[0.96, 0.00, −0.30], 20.6°	[1.00, 0.00, −0.09], 17.1°	[0.99, 0.00, −0.12], 17.2°	[0.99, 0.00, −0.14], 14.3°
V22	[−0.30, 0.63, 0.72], 47.1°	[−0.28, 0.65, 0.70], 52.4°	[−0.29, 0.65, 0.70], 51.8°	[−0.31, 0.63, 0.71], 53.1°
V23	[−0.25, −0.63, −0.74], 57.2°	[−0.25, −0.67, −0.70], 56.9°	[−0.25, −0.67, −0.70], 57.1°	[−0.26, −0.70, −0.66], 59.0°
V24	[0.91, −0.41, 0.00], 21.1°	[0.96, −0.28, 0.00], 17.6°	[0.95, −0.30, 0.00], 17.1°	[0.91, −0.41, 0.00], 15.4°

Tab.I.9: Axes et angles de désorientations entre V1 et les 23 autres variants calculés avec la RO de KS théorique et avec celles mesurées expérimentalement. Résultats des travaux de [77].

Ce travail les a amené à proposer une classification cristallographique des microstructures bainitiques ou martensitique en lattes, proche de celle de Fuhuraha et al. La figure I.22 tirée de leurs travaux reprend schématiquement les trois catégories proposées. Elles se distinguent par leurs sous-structures et la prédominance de certains variants:

- Type I : chaque paquet contient seulement deux variants (V1/V4) faiblement désorientés d'environ 6° (sous-blocs). Ce type correspond à la bainite formée à haute température (= type A selon [75]).
- Type II : chaque paquet contient des blocs fortement désorientés de 60° (V1/V2). Chaque bloc est formé par un seul variant. Ce type correspond à la bainite formée à basse température (= type C selon [75]).
- Type III : chaque paquet contient des blocs fortement désorientés de 60° (V1/V2). Chaque bloc est formé par deux variants faiblement désorientés correspondant à des sous-blocs (structure typique de la martensite) (= type B selon [75]).

Si la température de transformation augmente, la structure de sous-blocs disparait et à plus haute température encore, c'est la structure de blocs qui n'est pas observée.

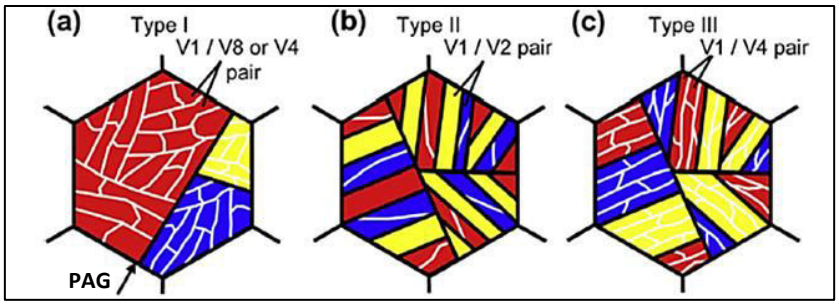


Fig.I.22 : Représentation schématique des appariements de variants dans : (a) une bainite formée à 580°C (b) une bainite formée à 450°C et (c) une martensite en lattes, pour un acier Fe-0.15%C-1.5%Mn-0.2%Si [77]. Ces trois structures typiques peuvent être utilisées pour classer les bainites et martensites en lattes.

Contrairement aux approches morphologiques qui laissent plus de place aux interprétations et aux discussions sur les mécanismes de formation, il apparait que les descriptions et propositions de classifications cristallographiques des bainitiques sont plus cohérentes entre elles, même si les dénominations exactes ne sont pas les mêmes. Cette analyse nous a aussi permis d'identifier un outil, la distribution des désorientations, qui permet de caractériser en une seule représentation, la nature d'une microstructure bainitique et que nous avons utilisé très souvent dans ce travail de thèse.

II.3. Microstructures de défauts

Comme nous l'avons discuté à de nombreuses reprises, les transformations martensitiques et bainitiques présentent des déformations de transformation significatives (avec cisaillement et variation de volume) et induisent de la déformation plastique dans l'austénite mère et les structures déjà transformées. En conséquence, microstructures bainitiques et martensitiques présentent des densités très importantes de défauts cristallographiques, allant des dislocations isolées aux macles en passant par des sous-joints. Dans cette partie, nous allons discuter de ces défauts et de leurs densités dans les structures martensitiques, bainitiques en lattes et bainitiques granulaires.

II.3.1 Défauts structuraux des microstructures martensitiques

La transformation martensitique lors du refroidissement de l'austénite a presque toujours lieu à basse température, sous Ms. Par conséquent, les lattes et blocs formés sont généralement fins et auto-accommodants d'un point de vue cristallographique, pour minimiser l'énergie de déformation [78, 79]. Ce processus induit aussi une densité élevée de dislocations qui ne peuvent restaurer à ces basses températures [80].

Plusieurs études récentes ont déterminé la densité de dislocations dans des aciers martensitiques en lattes avec différentes méthodes. Morito et al. [79] ont mesuré une densité moyenne de 1.1×10^{15} m^{-2} au MET pour un acier Fe-0.18%C. Takebayashi et al. [81] ont trouvé des valeurs entre 6.3×10^{15} m^{-2} et 20×10^{15} m^{-2} dans un acier Fe–0.3%C–0.49%Si–1.98%Mn avec deux méthodes différentes de diffraction X. Berecz et al. [82] ont obtenu une densité de dislocations de 3.5×10^{15} m^{-2}, évaluée par EBSD sur un acier Fe-0.15%C-0.38%Si-1.2%Mn-3%Ni. Ces mesures sont en pratique difficiles, compte tenu de la densité de défauts.

La plupart des structures martensitiques contiennent d'importantes densités de micromacles car le maclage peut servir lors de la formation d'un plan invariant (cf. figure I.14). Il est relativement admis que la densité des micromacles est d'autant plus élevée que la température Ms est faible. Kelly et al. [83] relient d'ailleurs implicitement température de transformation, densité de micromacles et résistance mécanique de la martensite. Dans les martensites en

lattes, les fractions de zones micromaclées sont souvent faibles (quelques pourcents volumiques) alors qu'elles atteignent près de 100% dans les martensites en plaquettes ou en papillon [84].

II.3.2 Défauts structuraux des microstructures bainitiques

Les microstructures bainitiques en lattes se forment à des températures généralement supérieures à Ms. En conséquence, comme l'austénite présente un comportement mécanique plus accommodant et que la transformation hormis peut-être sa germination, n'est pas totalement displacive, on observe dans la bainite des densités de dislocations plus faibles que dans les martensites. Cette densité diminue en général quand la température de transformation augmente [85]. Par conséquent, elle varie aussi avec la largeur des lattes de bainite. Dans ce sens, un lien a été établi par Zhu et al., entre la densité de dislocations dans la bainite et la largeur des lattes [86]. Pour un exemple d'aciers bainitiques étudiés, Fe-0.25%C-2.07%Mn-0.02%Al transformé à 500°C et à 400°C, ils estiment respectivement des densités de dislocations de 1.2×10^{14} m^{-2} et de 6.5×10^{14} m^{-2}. D'autres travaux [87] montrent que la densité de dislocations dans la bainite peut atteindre les 10^{13} m^{-2}. Les résultats ont été obtenus sur deux nuances d'acier Fe-0.37%C-1.5%Al-1.5%Mn et Fe-0.34%C-1.3%Si-1.5%Mn. Cette relation entre taille de lattes et densité de dislocations empêche aussi de découpler avec certitude l'influence de ces défauts structuraux sur les propriétés mécaniques.

Selon l'ISIJ Bainite Committee, la bainite granulaire, constituée de paquets ferritiques de forme granulaire ou équiaxe faiblement désorientés, se distingue des ferrites pro-eutectoïdes formées à plus haute température par une plus forte densité de dislocations [73]. Toutefois, les ordres de grandeurs ne sont pas spécifiés.

Dans les structures bainitiques, peu d'auteurs ont reporté la présence de ferrite micromaclée comme on pourrait l'observer dans les structures martensitiques. L'un des seuls travaux qui y fait explicitement référence est celui de Catteau et al. [88].

II.4. Conclusion

L'existence des ROs entre la phase parente et les phases filles dans les aciers, induit des relations spécifiques entres les variants cristallographiques. Des microtextures bien particulières en résultent et sont caractéristiques des différents types de produits de transformation. Ceci a donné lieu à des classifications des bainites assez cohérentes entre elles selon les approches cristallographiques, mais moins cohérentes selon les approches morphologiques. En effet, les observations après attaque chimique (au MEB ou en microscopie optique) ne révèlent pas les mêmes objets que les analyses cristallographiques. La notion de lattes elle-même peut être une source de confusion. Cette comparaison des classifications montre aussi à quel point le choix d'une technique d'analyse (microscopie optique, électronique, EBSD) peut influencer les conclusions concernant ces aciers.

III. Mécanismes de formation des bainites en lattes et granulaire

Bien que mis en évidence depuis presque un siècle maintenant, les mécanismes de formation des microstructures bainitiques font encore l'objet d'une controverse. Deux familles de théories antagonistes s'opposent principalement dans la communauté [89]: les théories dites « displacives » établies originellement par Ko [90] et défendues principalement par Bhadeshia [6] et ses collaborateurs et les théories « diffusives » soutenue par H. Aaronson [91] et ses collaborateurs. Le terme « displacif » souvent utilisé est toutefois peu différenciant car tous les chercheurs s'accordent sur le fait que la transformation bainitique n'est pas purement reconstructive et s'accompagnent d'une déformation de transformation avec cisaillement

importante à l'instar de la martensite. Dans ce cas précis, cela explique en partie les relations d'orientation avec l'austénite mère. En conséquence, il est peut-être plus pertinent de qualifier ces dernières théories « displacives » de « diffusionless » (sans diffusion).

Dans cette section, nous allons présenter succinctement ces deux grandes familles de modèles, sans nécessairement prendre parti, et surtout essayer de faire le lien entre mécanismes de formation et produit de transformation. Autrement dit, nous allons essayer de montrer comment ces théories expliquent la diversité des microstructures bainitiques que nous avons décrites dans les deux premières sections. Nous terminerons en discutant les mécanismes de formation de la bainite granulaire.

III.1. Controverse sur la transformation bainitique en lattes

III.1.1. Théorie « diffusionless »

III.1.1.1.Principe

Cette théorie suppose que la bainite germe sous la forme de sous-unités de ferrite sans diffusion (« diffusionless ») à partir de l'austénite à l'instar de la martensite. Les unités sont alors sursaturées en éléments interstitiels (en carbone, le plus couramment). Dans un second temps, intervient la partition de ces éléments de la ferrite vers l'austénite du fait des températures de transformation élevées. La sursaturation en carbone dans la ferrite diminue donc rapidement avec le temps. Pour les autres éléments d'alliages substitutionnels, comme le manganèse, le nickel ou le silicium, on considère que toutes les réactions ont lieu en condition de paraéquilibre (partition du carbone ou précipitation des carbures par exemple).

Le carbone peut alors soit précipiter sous forme de carbures dans l'austénite et dans les sous-unités si la température est basse comme dans le cas des bainites dites inférieures, soit enrichir et stabiliser l'austénite si des éléments inhibiteurs de la précipitation de la cémentite (silicium et/ou aluminium) sont présents en quantité suffisante.

Sur cette base, un modèle de mécanisme de formation a été proposé par Takahashi et Bhadeshia [92]. Les auteurs supposent qu'il n'y a pas de différence fondamentale entre les mécanismes de formation des deux bainites supérieure et inférieure, si on considère que la ferrite bainitique de départ est sursaturée en carbone. La température de transition pour passer d'un mécanisme à l'autre est proche de 350°C. Ce constat se base sur les travaux de Matas et Hehemann pour plusieurs aciers contenant entre 0.38% à 1% de carbone [93].

Dans cette théorie, l'augmentation de la fraction de bainite avec le temps est contrôlée uniquement par une succession d'évènements de germination. Il n'y a pas de croissance à proprement parler. La figure I.23. représente schématiquement la compétition entre germination et partition du carbone. A hautes températures, germination de nouvelles sous-unités et désaturation en carbone se succèdent rapidement et expliquent les carbures inter-lattes alors qu'à basses températures, la diffusion du carbone n'est pas assez rapide et les carbures précipitent à l'intérieur des lattes (produisant des carbures intra-lattes). On retrouve dans ce cas la classification morphologique de la bainite supérieure et inférieure telle que proposée par Mehl et al [9].

Les défenseurs de la théorie « diffusionless » considèrent que la croissance d'un bloc (« sheaf ») bainitique se fait par germination et croissance successive de sous-unités et donc des lattes. La vitesse moyenne de croissance d'un bloc est donc limitée par celle des sous-unités, qui est très rapide. Bhadeshia a montré qu'elle est nécessairement plus rapide qu'une croissance contrôlée par la diffusion de carbone à l'interface ferrite/austénite [94].

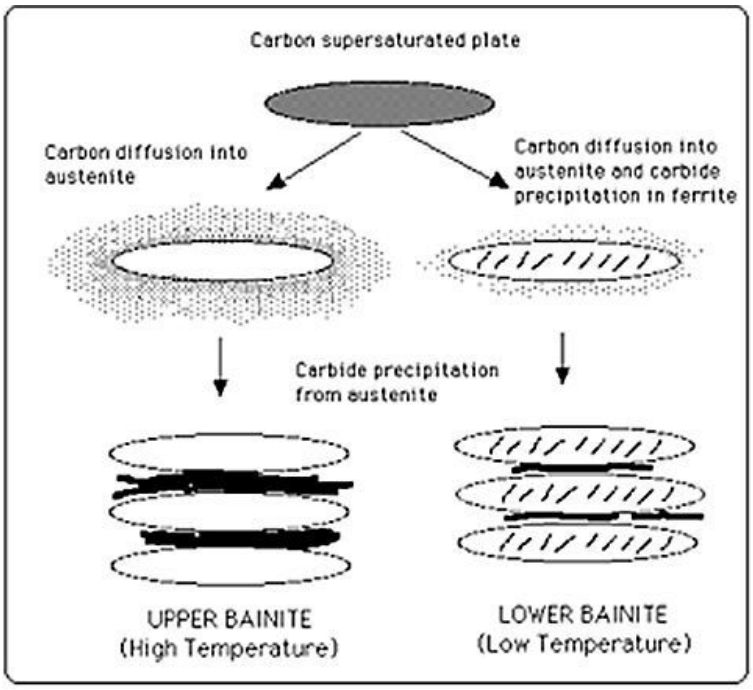


Fig.I.23 : Formation des bainites supérieure et inférieure montrant la répartition du carbone entre les phases et la localisation de la précipitation des carbures selon [92].

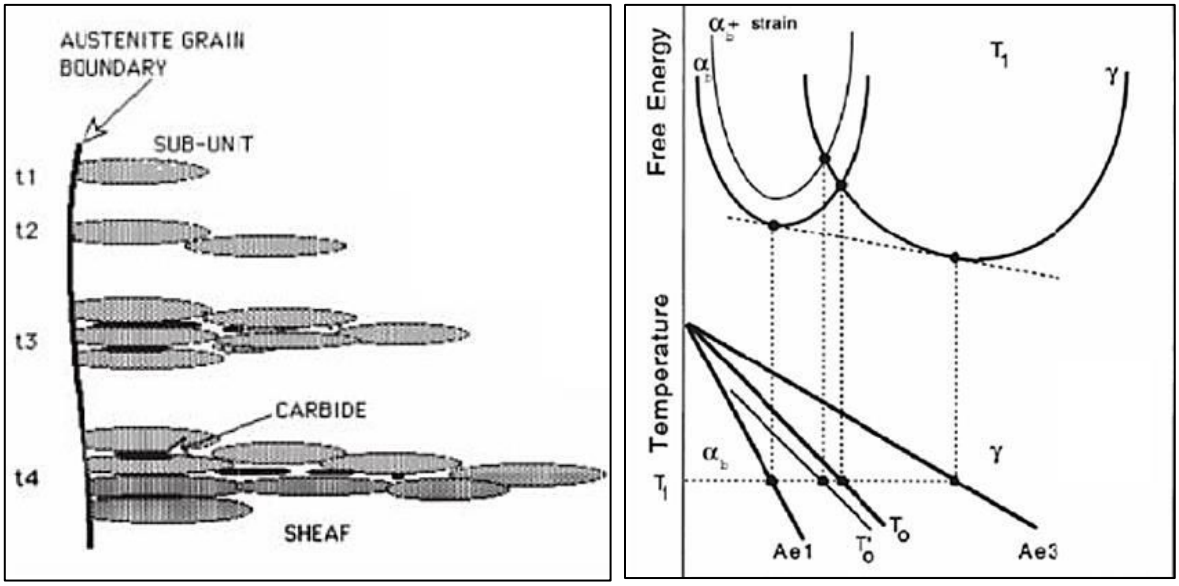
III.1.1.4. Phénomène de réaction incomplète

Cette première famille de modèle a l'avantage de pouvoir expliquer simplement pourquoi certaines transformations bainitiques peuvent s'arrêter précocément. On parle alors de « stasis » ou de transformation incomplète. C'est un mécanisme qui touche principalement les transformations bainitiques sans carbure (classe BI de Ohmori par exemple).

Dans le cadre de cette théorie, le facteur limitant la transformation bainitique est la teneur en carbone dans l'austénite. L'austénite s'enrichit en carbone au fur et à mesure que les sous-unités de ferrite bainitique se forment. Celles-ci possèdent la même teneur en carbone que l'austénite parente lors de leur formation. Donc les nouvelles sous-unités seront formées à partir d'une austénite de plus en plus riche en carbone. Toutefois, la formation des sous-unités de ferrite bainitique étant un mécanisme dissipatif, elle requiert que les énergies libres de Gibbs des sous-unités soient inférieures à celle de l'austénite dans laquelle elles se forment. La figure I.24.a décrit la séquence de formation des sous-unités de bainite selon Bhadeshia. Il existe ainsi une solubilité en carbone dans l'austénite au-delà de laquelle une transformation sans changement de composition devient inopérante. Bhadeshia a conceptualisé cette approche par la courbe T_0 [6]. Il s'agit de reporter pour chaque température considérée la valeur de concentration en carbone pour laquelle la ferrite bainitique et l'austénite ont la même enthalpie libre de Gibbs. Elle définit ainsi la solubilité en carbone de l'austénite maximale dans le cadre d'une transformation displacive. Bhadeshia a également introduit la courbe T_0' qui est définie de manière similaire à la courbe T_0 mais corrigée par l'énergie de déformation élastique due à la formation de ferrite bainitique. La figure I.24.b illustre la construction des courbes T_0 et T_0' où à chaque température de transformation T_i on associe la valeur du taux de carbone correspondante à l'intersection des deux courbes d'énergie libre de Gibbs $G\alpha_b$/$G\alpha_b$+strain (ferrite bainitique/ferrite bainitique et énergie élastique) et $G\gamma$ (austénite).

Au-delà de cette composition en carbone, d'après cette théorie, aucune germination n'est possible et en l'absence de croissance, la transformation s'arrête. Sans précipitation de

carbures, la structure finale est constituée de lattes de ferrite et d'austénite résiduelle enrichie en carbone. En pratique, la précipitation du carbure n'est que retardée par des éléments d'alliage comme le silicium ou l'aluminium et l'austénite enrichie finit toujours par se décomposer en ferrite et en cémentite aux temps longs. Ce mécanisme correspondrait au stade II du revenu de la martensite par exemple.



(a) (b)

Fig.I.24 : (a) Illustration schématique de la séquence de formation de la bainite (b) Construction schématique des courbes T_0 et T_0'. Figures tirées de [6].

III.1.2. Théorie diffusive

III.1.2.1. Principe

L'école "diffusive" considère par contre que la transformation bainitique se déroule principalement comme une transformation ferritique classique (germination / croissance) avec toutefois une déformation de transformation par plan invariant (comme dans le cas de la ferrite de Widmanstätten) et que transformation de phase et partition du carbone à l'interface austénite/ferrite ont lieu simultanément.

Les pionniers de la théorie diffusive considèrent la germination de la ferrite bainitique dans le cadre de la théorie classique de la germination [89]. Quidort et Bréchet ont ainsi montré par des observations expérimentales que la densité de germes diminue avec la température [95], ce qui est en contradiction avec la théorie de la germination displacive où la densité de germination augmenterait lorsque la température diminue (augmentation de la force motrice). Les défenseurs de la théorie diffusive estiment ainsi que le facteur limitant la germination de la ferrite bainitique est la diffusion du carbone aux joints de grains austénitiques [96].

La théorie diffusive ne décompose pas la formation d'un bloc (« sheaf ») bainitique en étapes distinctes. Les sous-unités se forment également aux joints de grains austénitiques. La croissance de ces sous-unités se fait ensuite par l'avancée de l'interface austénite/ferrite [96]. Pour les températures de transformation peu élevées, c'est-à-dire dans le domaine de la bainite inférieure, le carbone reste en partie piégé dans la ferrite bainitique comme le montre la configuration (d) de la classification d'Aaronson. La vitesse de croissance est donc contrôlée par la diffusion du carbone à l'interface austénite/ferrite [89].

En règle générale, des conditions de paraéquilibre s'appliquent au niveau du front de transformation [89]. Ainsi, seul le carbone partitionne à l'interface alors que les concentrations en atomes substitutionnels sont alors égales de part et d'autre de l'interface. Toutefois, plusieurs études ont mis en évidence un effet « solute-drag » de certains atomes substitutionnels comme le nickel [95, 97], c'est-à-dire que certains éléments peuvent diminuer la mobilité de l'interface considérée.

IIII.1.2.1. Phénomène de réaction incomplète

Les auteurs de l'approche diffusive considèrent que le phénomène de réaction incomplète n'est pas propre à la transformation bainitique mais est dû aux effets des éléments d'alliage comme le nickel ou le manganèse par exemple qui présente un fort effet de "solute drag" [92,98].

D'autres approches expliquent ce phénomène par une dissipation des forces motrices à l'interface austénite/ferrite. Dans ce sens, les travaux récents de Hutchinson et al. [99] montrent que « l'arrêt » de la transformation est contrôlé par la diminution de la teneur en carbone à l'interface à cause de mécanismes dissipatifs dans l'interface.

Bouaziz et al. [100] ont proposé un autre mécanisme physique pour expliquer le phénomène de réaction incomplète. Cette explication est basée sur la déformation plastique de l'austénite accompagnant la transformation. Ils considèrent que le changement de volume accompagnant la transformation bainitique est accommodée par la déformation plastique de l'austénite. Le travail lié à cette déformation augmente donc au fur et à mesure que se forme la ferrite bainitique, mais aussi à mesure que l'austénite s'enrichit en carbone. Il est alors important de prendre en compte que l'énergie de déformation plastique de l'austénite est une source non négligeable de dissipation pour les forces motrices. Il est ainsi possible d'établir une limite qui correspond à l'instant où la totalité des forces motrices ont été dissipées, ce qui signifie par conséquent l'arrêt de la transformation de phase.

Cette dernière approche est intéressante car elle montre que les termes thermochimiques seuls ne sont peut-être pas suffisants pour appréhender la nature complexe de la bainite. Les défauts constitutifs (dislocations, joints et sous-joints) jouent aussi un rôle important que nous allons discuter dans cette thèse.

III.2. Mécanisme de formation de la bainite granulaire

Selon Bhadeshia [6], les facteurs favorisant la formation de cette bainite granulaire sont : une faible teneur en carbone limitant la présence de carbures, ainsi qu'un régime de refroidissement continu. Le type et la fraction volumique des secondes phases dépendent, d'après Zajac et al. [22] essentiellement de la composition de l'alliage, de la vitesse de refroidissement et de la température finale après refroidissement.

Cizek et al., qui utilisent la terminologie définie par l'ISIJ Bainite Committee, suggèrent que la bainite granulaire se développe à partir de lattes de ferrite de Widmanstätten, qui ont germé directement sur les joints de grains austénitiques. Elle présente tout simplement un produit de transformation de ferrite de Widmanstätten qui a subi une dégénération significative [101]. Il a été également proposé que la ferrite de Widmanstätten puisse acquérir progressivement cette forme plus irrégulière qui constitue la bainite granulaire, dite "dégénérée", via un élargissement des lattes localisées et une coalescence des grains [102].

Nous constatons que les travaux qui décrivent la transformation bainitique granulaire sont toutefois rares et n'expliquent pas toutes la variété de bainites granulaires observées. Dans le cadre de notre travail, nous essayerons d'éclaircir ces mécanismes ; on montrera que la

structure bainitique en latte constitue peut-être effectivement un intermédiaire réactionnel pour expliquer la formation de la bainite granulaire.

III.3. Conclusion

Tout comme leurs classifications, les mécanismes de formation des structures bainitiques sont encore loin de faire l'unanimité. La connaissance des produits de transformation ou de leurs cinétiques ne suffit pas pour pourvoir valider l'une ou l'autre des grandes théories possibles. Des mécanismes ont été proposés pour expliquer la formation des bainites inférieures ou supérieures, mais aussi granulaires. La complexité survient du fait que ces microstructures, comme les aciers martensitiques, peuvent encore évoluer lors de traitements thermiques ultérieurs. Il est donc parfois difficile de distinguer ce qui peut provenir de la transformation proprement dite et d'un processus de vieillissement, car les processus en jeu peuvent être de même nature (partition du carbone, précipitation des carbures, évolutions de densités de défauts, …). A ce titre, on s'aperçoit qu'un des mécanismes suggérés pour la transformation bainitique granulaire est justement la succession d'une transformation ferritique aciculaire suivie d'une évolution morphologique. Dans la prochaine partie de ce chapitre, nous analyserons la littérature disponible concernant l'évolution microstructurale de la bainite lors d'un maintien isotherme.

IV. Evolution microstructurale de la bainite lors d'un maintien isotherme

Nous avons discuté dans la section précédente des différentes approches permettant d'expliquer la formation des microstructures bainitiques en lattes. Comme ces microstructures ne sont pas dans un état d'équilibre thermodynamique, elles peuvent évoluer lors de maintien thermique isotherme, à l'instar de ce que l'on appelle classiquement le revenu de la martensite.

Dans une première partie, nous présenterons les mécanismes métallurgiques et microstructuraux qui affectent les structures martensitiques en lattes à des fins de comparaison. Nous montrerons dans un second temps que des mécanismes assez similaires touchent les microstructures bainitiques lors de traitements thermiques ultérieurs à leurs formations. Nous reverrons que peu d'études ont été consacrées à ce sujet car ces processus sont plus lents et moins spectaculaires que dans la martensite. Pourtant, ils peuvent avoir des conséquences significatives sur les propriétés mécaniques. Ces cinétiques réduites sont en partie dues à des forces motrices plus faibles que dans la martensite. Nous essayerons aussi d'expliciter et de quantifier les forces motrices de ces transformations morphologiques des lattes ferritiques.

IV.1. Mécanismes de revenu d'une structure martensitique en lattes

Le revenu est l'ensemble des mécanismes métallurgiques affectant la martensite pendant un traitement thermique ultérieur à sa formation, à des températures qui ne permettent pas la formation de la phase austénitique [103,104]. Par extension, on parle aussi de revenu pour qualifier le traitement thermique considéré. Le terme d'auto-revenu qualifie les évolutions métallurgiques pouvant se produire au cours du traitement thermique initial quand la transformation martensitique est seulement partielle. Ces mécanismes concernent donc les premières lattes formées qui peuvent évoluer avant le retour à température ambiante par exemple. Le revenu altère les microstructures mais aussi les propriétés mécaniques. On se sert d'ailleurs souvent de cet indicateur pour suivre le revenu. On considère souvent que le revenu ne débute qu'au-delà de 80-100°C. A plus basse température, on parle plutôt de vieillissement. Nous utiliserons toutefois aussi ce terme pour parler d'évolutions à plus haute température.

Les évolutions lors du revenu sont fonction de la température T et du temps t de traitement. La plupart des travaux montre même que l'on peut identifier une équivalence entre temps et température, car les mécanismes sont principalement diffusionnels et donc thermiquement activés. Autrement dit, si la température est faible, les évolutions prennent plus de temps. Cette équivalence se traduit souvent sous la forme d'une loi dite de Hollomon-Jaffe [105], qui propose un indicateur unique H de la sévérité du revenu :

$$H_{HJ} = T\,(C + \log(t)) \quad (I.2)$$

avec C une constante sans unité à déterminer. T est donné en kilokelvins et t en heures. Dans ces conditions, typiquement C ~ 20.

On distingue généralement quatre stades possibles de revenu, comme le récapitule le tableau I.10. Ce tableau tiré de [106] distingue les mécanismes de vieillissement opérant à basses températures, y compris jusqu'à -60°C. On considère généralement que cette température est la limite en dessous de laquelle la diffusion des atomes de carbone n'est plus possible. Chaque stade se distingue par des mécanismes qui lui sont propres. Ces mécanismes peuvent être ou non opérants en fonction de la composition chimique des aciers considérés.

Tempering stage	*Phenomenon*	*Temperature Range*
A1	Cluster formation + segregation	− 60 to 0°C
A2	Ordering + segregation	0–80°C
T1	Precipitation of ε or η-carbides	80–150°C
T2	Transf. of retained γ	150–250°C
T3	Precipitation of θ	150–700°C
T4	Coarsening, recovery, recrystallization	400–700°C

Tab.I.10 : Mécanismes de revenu de la martensite par domaine de température [106].

IV.1.1. Vieillissement

Les mécanismes de vieillissement (correspondant aux stades A1 et A2 du tableau I.10) des aciers haut-carbone (>0.2%C / Ms faible) commencent à des températures basses, inférieures à 100°C. Ils consistent principalement en la ségrégation du carbone en solution solide (en excès dans la ferrite) sur les défauts cristallins (joints, macles très nombreuses, dislocations) ou en la formation de « clusters » d'atomes de carbone [107, 108, 109].

Pour les aciers bas-carbone (<0.2%C / Ms élevé), la redistribution du carbone a souvent lieu directement durant l'étape de trempe initiale (auto-revenu) [104]. Il est donc difficile d'observer une martensite non vieillie dans ces conditions.

IV.1.2. Stade I de revenu

Le stade I du revenu martensitique a lieu aux faibles températures entre 100 et 200°C [104] et n'est observé que pour les aciers haut carbone.

Pour les aciers haut-carbone, lors de cette première étape, le carbone ségrégé au niveau des dislocations ou des clusters, précipite sous forme de carbures de transition. Ces carbures sont de type ε selon [110] ou de type η-Fe_2C selon [111-113]. Des carbures de Hägg (Fe_5C_2, monocliniques) ont également été observés pour un revenu proche de cette gamme de température [114].

Dans le cas des aciers bas-carbone, la précipitation des carbures ε est inhibée dans cet intervalle de température. En effet, comme le carbone est déjà majoritairement ségrégé sur les dislocations par auto-revenu et que l'énergie de ces sites est plus faible que celle des carbures

ε, la force motrice disponible est insuffisante pour la précipitation [115,116]. Par conséquent, seule la cémentite commence à précipiter à ces températures pour les aciers à bas carbone [6]. Il s'agit donc *stricto sensu* d'un stade II.

IV.1.3. Stades II et III de revenu

Les stades II et III du revenu correspondent respectivement à la précipitation de la totalité du carbone sous forme de cémentite (directement ou par conversion des carbures de transition), car plus stable thermodynamiquement et à la décomposition de toute l'austénite résiduelle possible en ferrite et carbures (perlite dégénérée) [104]. Ces mécanismes sont actifs au-delà de 150°C typiquement, pour des temps longs [6,107].

IV.1.4. Stade IV de revenu

Le stade IV du revenu se caractérise par la sphéroïdisation progressive des carbures, une restauration extensive et enfin une recristallisation des lattes de ferrite pour obtenir une structure finale en grains équiaxes. Selon les compositions d'alliages, il peut se manifester au-delà de 280°C [107], mais plus souvent à hautes températures.

Les mécanismes de restauration (diminution des densités de dislocations) débutent au-dessus de 400°C, ceux de recristallisation n'apparaissent qu'aux alentours de 600 à 700°C [104]. Lors de la restauration, les dislocations entre les lattes de martensite sont annihilées pour donner une structure granulaire ressemblant à celle de la figure I.25.a. Cette figure I.25 montre des micrographies optiques après attaque de microstructures martensitiques revenues à différents stades (différentes sévérités de revenu). La microscopie optique n'est peut-être pas la technique la plus pertinente pour observer les lattes, mais celles-ci sont bien observables compte tenu de la taille de grains austénitiques. Le phénomène de recristallisation est favorisé dans les aciers à bas carbone, car les joints de grains sont plus mobiles du fait du plus faible nombre de carbures (cf. figure I.25.b). Suite à un plus long revenu à plus haute température, la microstructure obtenue (cf. figure I.25.c) est totalement granulaire; elle consiste en des grains de ferrite polygonaux contenant des carbures sphéroïdaux dispersés. Le prolongement du traitement conduit à la croissance des carbures et des grains de ferrite. Le lecteur averti notera que les échelles des micrographies de la figure I.25 sont différentes et donc que les tailles des grains ferritiques augmentent avec la sévérité du revenu.

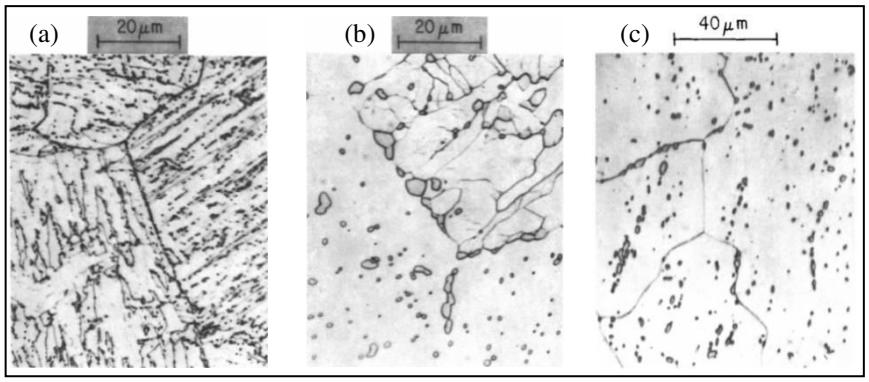


Fig.I.25 : Micrographie optique après attaque d'une (a) structure restaurée d'une martensite revenue à 600°C / 10 min dans un acier Fe-0.18%C, (b) structure martensite revenue à 600°C / 96h avec épinglage des joints de grains par la cémentite, (c) structure complètement recristallisée après un revenu à 700°C / 8h. Figures tirées de [117].

IV.1.5. Effet sur les propriétés mécaniques (dureté)

Le revenu des aciers martensitiques s'accompagne d'un adoucissement progressif couplé à une augmentation de ductilité du matériau. Ce comportement correspond d'abord à la

précipitation des carbures ε en stade I, à la formation de la cémentite en stade II, à la sphéroïdisation de la matrice ferritique puis à sa restauration/recristallisation en stade IV [104,117]. La figure I.26 présente les évolutions de la dureté pour des aciers à différents taux de carbone, après différentes étapes de revenu. Les domaines des différents stades ne correspondent pas tout à fait à ceux décrits dans le tableau précédent car ils ne font pas systématiquement consensus et peuvent dépendre de la composition. Toutefois, l'enchainement des mécanismes est similaire.

Une petite augmentation de la dureté est parfois observée pour les aciers à haut-carbone, ceci à cause de la ségrégation du carbone sur les dislocations [118-120]. On peut observer également un durcissement secondaire lors du revenu si l'acier est susceptible de former des carbures d'alliages suite à la dissolution de la cémentite. Ces mécanismes sont possibles si l'acier contient d'autres éléments carburigènes tels que le titane (formation de TiC), le vanadium (formation de V_4C_3) ou le molybdène (formation de Mo_2C) [121].

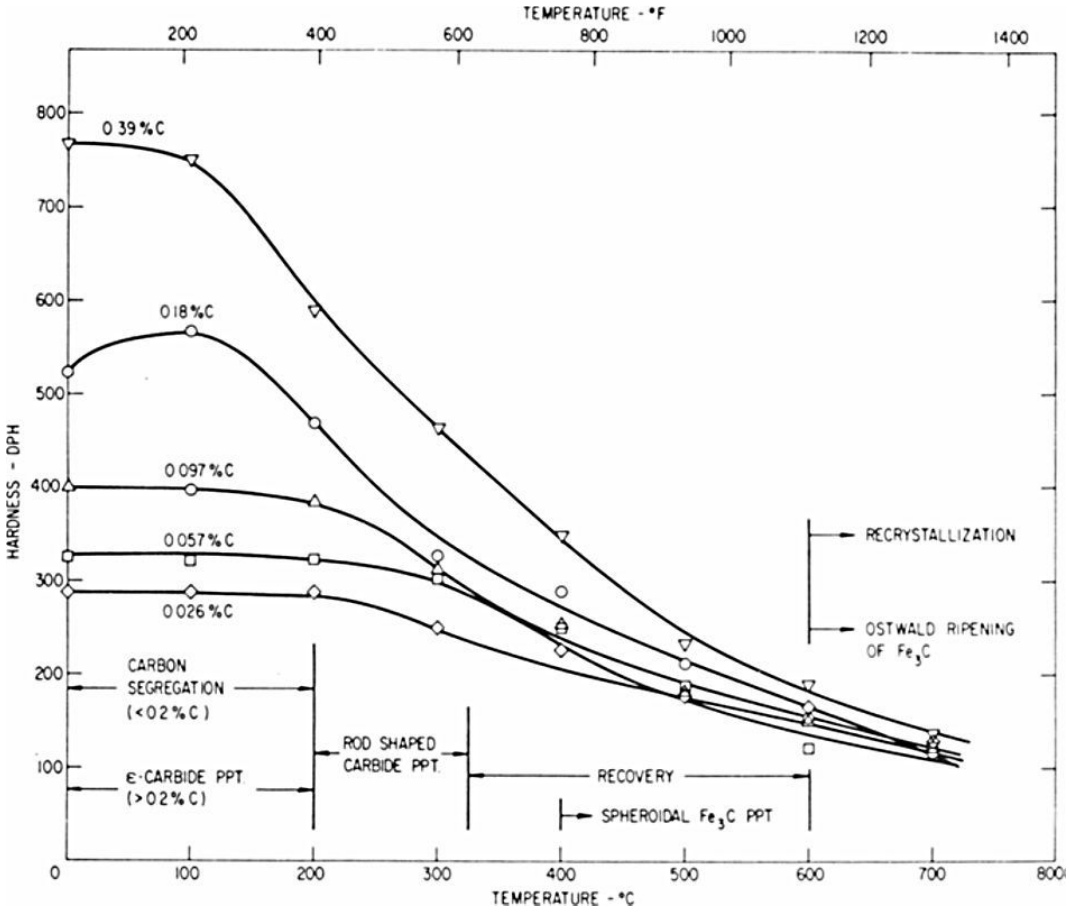


Fig.I.26: Evolution de la dureté pour des aciers martensitiques à différentes teneurs en carbone en fonction de la température et donc des étapes de revenu (même temps de revenu). Plus les aciers sont riches en carbone, plus leur dureté initiale brute de trempe est élevée. Figure tirée de [104].

IV.2. Mécanismes de revenu des microstructures bainitiques en lattes

IV.2.1. Phénoménologie

Généralement, la bainite se forme à des températures plus élevées que la martensite. La redistribution du carbone de la ferrite sursaturée vers l'austénite résiduelle ou bien la précipitation des carbures sont inévitables et ont lieu lors de la transformation. On pourrait interpréter de façon un peu exagérée la transformation bainitique comme un processus

couplant une transformation martensitique et un auto-revenu immédiat selon la théorie « diffusionless ».

Tout comme la martensite, la bainite est une microstructure métastable mais son comportement vis-à-vis du vieillissement ou d'un traitement thermique ultérieur est un peu différent. Ceci est dû en partie au fait que la ferrite bainitique contient beaucoup moins de carbone en solution solide qu'une martensite brute de trempe. Par ailleurs, vu sa température de formation déjà élevée, la bainite subit également un processus de restauration durant sa transformation. Les densités de dislocations dans la bainite dont nous avons déjà discuté, sont très largement inférieures à celles reportées dans les aciers martensitiques. Il est communément admis que cette restauration conduit à réduire le potentiel d'une restauration ultérieure, y compris lorsque la même microstructure subit un vieillissement isotherme à une température supérieure à la température de transformation. Par exemple, des aciers bainitiques bas-carbone présentent une restauration négligeable lorsqu'ils sont vieillis pendant une heure à des températures atteignant les 700°C [122, 123]. La morphologie des lattes et la densité des carbures varient également avec des cinétiques plus lentes.

La figure I.27 montre l'enchainement des mécanismes de revenu attendus dans un acier bainitique à 500°C en fonction du temps. C'est seulement après des temps très prolongés de maintien isotherme (> 1 an) que des mécanismes tels que le grossissement de la cémentite ainsi que la recristallisation des lattes en microstructure equiaxe ont lieu. On notera aussi que le phénomène de durcissement secondaire est aussi beaucoup moins rapide dans la bainite, car la taille des particules de cémentite est plus élevée et celles-ci mettent donc plus de temps à se dissoudre [124]. Ainsi, comparés à ceux affectant la martensite, les mécanismes de revenu affectant la bainite devraient être beaucoup plus lents.

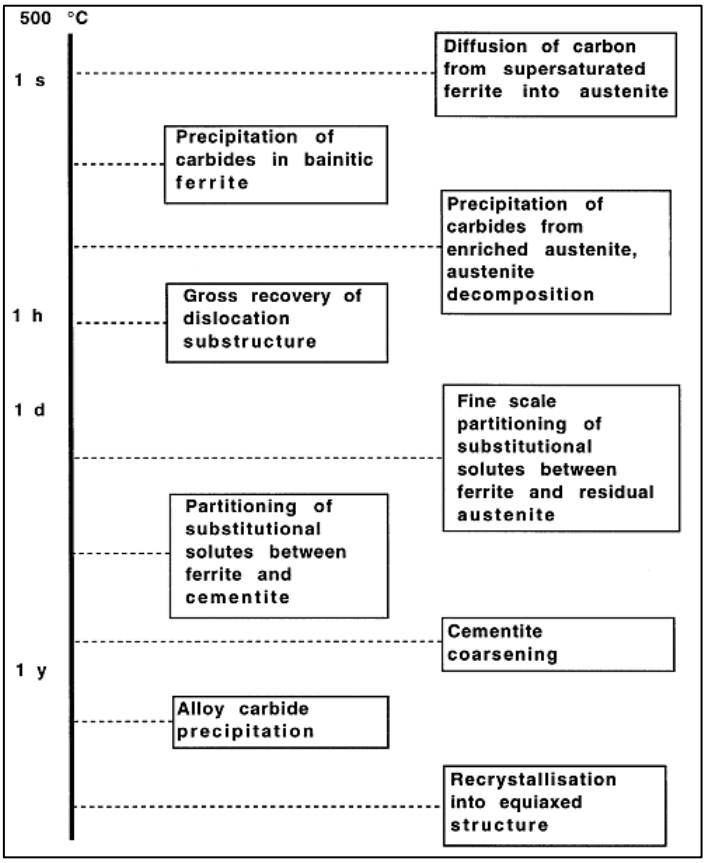


Fig.I.27 : Phénomènes de « revenu » possibles de la bainite et échelles de temps associées pour un revenu à 500°C [6]

Rares sont les travaux qui proposent des modèles quantitatifs pour étudier les cinétiques du revenu bainitique. Une description de l'efficacité d'un traitement thermique isotherme est possible à travers une expression empirique incluant les paramètres de temps et de température et appelée paramètre de revenu [6]. Ce paramètre H est défini par le produit :

$$H = t \exp\{-Q/RT\} \quad (I.3)$$

où Q est une énergie d'activation effective.

Faisant l'hypothèse que H reste constant, on peut, pour un alliage donné, estimer les temps nécessaires pour obtenir le même effet métallurgique à différentes températures de maintien isotherme. Tout comme pour le paramètre de Hollomon-Jaffe, cette méthode n'est *stricto sensu* pas rigoureuse dans le sens où les mécanismes microstructuraux varient avec la température. Cela nécessiterait de changer Q avec la température.

Certains auteurs utilisent aussi la loi de Hollomon-Jaffe H_{HJ} pour décrire cette équivalence temps-température, comme par exemple Irvine et Pickering [122]. En utilisant cette fonction, ces derniers montrent que seul le dernier stade du revenu de la bainite produit un adoucissement. La figure.I.28 montre la chute de dureté en fonction de ce paramètre H_{HJ} pour deux aciers modèles [122]. Pour ces deux aciers, la dureté diminue à partir d'une valeur de H_{HJ} = 18 et la dureté est divisée par deux pour des valeurs de H_{HJ} supérieures à 22. H_{HJ} = 18 correspond par exemple à un traitement de 30 h à 500°C ou de 850 h à 400°C. Nous montrerons dans nos travaux que sur nos nuances FeNiC nous avons pu déclencher des adoucissements dès H_{HJ} = 13, ce qui est relativement inattendu. Dans la suite, nous utiliserons régulièrement cette fonction avec C = 20 pour quantifier et comparer les revenus considérés.

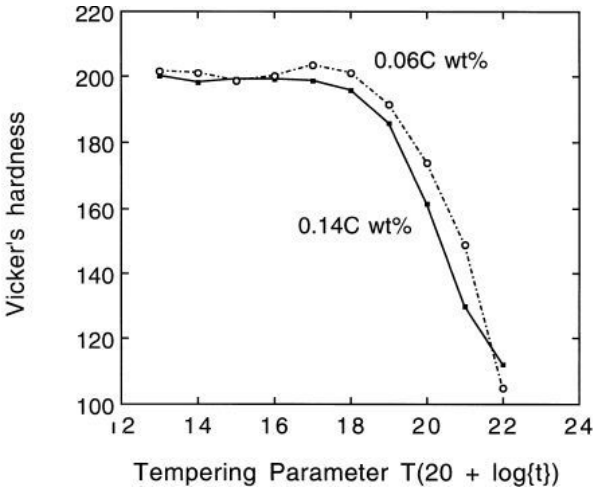


Fig.I.28 : Evolution de la dureté pour deux aciers bainitiques en fonction du paramètre temps-température H_{HJ}, T est la température en kilokevins et t en heures [122].

Dans ce qui suit, nous allons revenir en détail sur les mécanismes métallurgiques d'évolution morphologique et cristallographique de la ferrite bainitique et leurs forces motrices ainsi que sur les processus de maturation des carbures (taille, forme et composition).

IV.2.2. Mécanismes d'évolution morphologique et cristallographique de la ferrite bainitique

Il existe assez peu de travaux qui détaillent les mécanismes expliquant les évolutions morphologiques et cristallographiques de la ferrite bainitique en condition de revenu sévère (typiquement le stade IV du revenu de la martensite). Nous en avons identifié et catégorisé principalement trois types :

- la restauration des dislocations, tout comme en stade IV de la martensite
- le mécanisme dit de coalescence qui correspond à une disparition des joints entre lattes faiblement désorientées. On parle alors de bainite coalescée, même si cette structure ne se retrouve dans aucune classification a priori.
- la croissance de sous-grains, associée à la mobilité de joints fortement désorientés.

Il n'existe pas à l'heure actuelle de schéma explicatif global pour comprendre la formation des microstructures bainitiques equiaxes. Ces trois familles de mécanismes nous seront toutefois utiles pour décrire nos propres observations.

Restauration

Dans un matériau cristallin, la déformation plastique est accommodée par la création et le transport de dislocations. Ces dislocations sont de deux catégories selon les classifications de Nye [125] et Kroner [126] : les dislocations géométriquement nécessaires (GNDs) et les dislocations statistiquement stockées (SSDs). Les GNDs contribuent à la courbure du réseau cristallin et sont les vecteurs de la déformation plastique. Les SSDs n'entrainent aucune courbure du réseau et sont des débris de la déformation plastique [127]. La densité de GNDs est souvent largement plus faible que la densité de SSDs.

La restauration est classiquement définie comme un ensemble de mécanismes réactionnels entre dislocations individuelles et activés thermiquement conduisant à une diminution de la densité globale de dislocations. Typiquement, un acier bainitique contient une densité de dislocations entre 10^{13} et 10^{14} m^{-2} après formation. Cette densité diminue significativement au cours d'un traitement thermique typiquement d'un ordre de grandeur jusqu'à 10^{12} m^{-2} [128]. Ces mesures sont toutefois rares dans les aciers bainitiques.

Les dislocations ont une énergie de formation qui provient de leur structure de cœur, où les liaisons interatomiques sont fortement perturbées, et du champ de déformation élastique du réseau à grande distance qu'elles engendrent. Comme il est difficile d'évaluer cette contribution de cœur sauf par des modèles atomistiques, on retient en général que la densité volumique d'énergie stockée pour une densité de dislocations ρ est donnée par :

$$E_d = 0.5\ \rho.\mu.b^2 \quad (I.4)$$

où μ est le module de cisaillement du cristal, et b le vecteur de Burgers des dislocations considérées. Si l'on considère une microstructure bainitique juste après formation, on trouve une énergie stockée sous forme de dislocations entre 25 et 250 $kJ.m^{-3}$, soit de 180 à 1800 $mJ.mol^{-1}$. Pour cette application numérique, on a utilisé les valeurs suivantes μ = 80 000 MPa, b = 2.5 10^{-10} m et un volume molaire de 7.05 10^{-6} $m^3.mol^{-1}$. Ces valeurs d'énergies sont beaucoup plus faibles que celles mises en jeu lors de la transformation par exemple. On retient par exemple que l'énergie élastique stockée lors de la germination des sous-unités à cause de la déformation de transformation est de l'ordre de 400 $J.mol^{-1}$ d'après Bhadeshia (600 $J.mol^{-1}$ dans le cas de la martensite). Cette différence lui fait donc conclure que la force motrice dans le cas de vieillissement des structures bainitiques par croissance des grains serait l'excès d'énergie de surface (associée aux énergies d'interfaces entre lattes, blocs et grains). C'est un résultat que nous confirmerons par nos mesures.

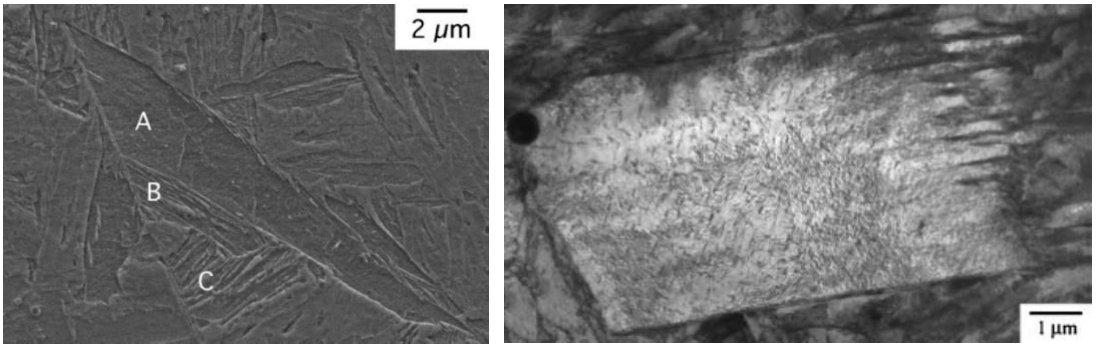
Coalescence des lattes

On peut noter tout d'abord que la coalescence de lattes de bainite a principalement été observée lors des traitements de refroidissement continu. Il s'agit en fait, de la coalescence des lattes adjacentes de bainite qui ont le même plan d'habitat pour former des lattes plus grossières, et ce, en l'absence d'autres phases [129]. Les lattes qui coalescent se sont formées

indépendamment mais avec une orientation cristallographique très proche (elles appartiennent au même variant et montrent une faible désorientation). Elles appartiennent donc au même sous-bloc. Ceci peut induire une distribution bimodale des tailles de lattes où les lattes grossières (produites par coalescence) qui font quelques micromètres d'épaisseur, se trouvent entourées par les structures en lattes fines. La Figure I.29.a montre un exemple de micrographie MEB après attaque d'une telle structure.

J.H.Pak et al. [130] ont montré qu'une bainite à lattes coalescées peut contenir des particules de cémentite mais présentent aussi des zones déplétées en carbures sur les bords. Le même phénomène se produit aussi lors de traitements thermiques isothermes d'après ces auteurs. Dans cette même étude, ils mettent en évidence les possibles gradients d'orientation (d'à peu près 0.3° dans [131]), vestiges des joints de lattes originelles. A l'extrémité du domaine coalescé, ces anciennes lattes restent donc observables par imagerie MET. La figure I.29.b montre une micrographie MET de bainite coalescée typique dans un acier Fe-0.032%C-0.25%Si-2.02%Mn-7.23%Ni-0.47%Mn-0.63%Mo. A l'extrémité droite de l'îlot en contraste clair, on observe les extrémités des lattes parallèles faiblement désorientées d'un point de vue cristallographique, ayant « fusionné » dans la partie centrale.

D'après ces auteurs, la coalescence ne peut avoir lieu que durant les premiers stades de la transformation où la croissance des lattes n'est pas gênée par la collision avec les autres régions de bainite ; c'est la latte coalescée qui se forme en premier, puis le reste des structures environnantes qui gardent leur morphologie en lattes individuelles.



(a) (b)

Fig.I.29 : (a) Micrographie MEB d'un acier Fe-2%Mn maintenu en condition isotherme à 395°C durant 7 h: trois régions distinctes s'appuient sur l'ancien joint de grain austénitique; 'A' latte épaisse de bainite coalescée; 'B' et 'C' lattes fines de bainite, d'après [127] (b) Micrographie MET de bainite coalescée typique dans un acier Fe-0.032%C-0.25%Si-2.02%Mn-7.23%Ni-0.47%Mn-0.63%Mo, d'après [130].

Le modèle de Li [132] décrit la coalescence en considérant le joint entre lattes faiblement désorienté comme un sous-joint formé de dislocations. Ce sous-joint peut disparaitre si les dislocations migrent par montée. Si l'on considère deux sous-grains de diamètre 2L et une désorientation induite par un mur de dislocations coin (composante tilt ou de flexion), le temps t nécessaire pour la disparition d'un sous-joint de désorientation de 2° est :

$$t=\frac{L^2kT}{3DE_0b^3j} \quad (I.5)$$

où D le coefficient d'auto-diffusion (du fer), E_0 est $\mu b/4\pi$ (1- ν), μ est le module de cisaillement, b est le vecteur de Burgers, ν est le coefficient de Poisson, k la constante de Boltzmann et j la densité de crans [133] qui peut prendre la valeur maximale de 1/(3b). Une

formule similaire est proposée pour un mur de dislocations vis (composante twist ou de torsion).

Si l'on se place à T = 600°C (873K), en prenant le coefficient d'autodiffusion du fer ($m^2.s^{-1}$)

$$D=2\times10^{-4}\exp\left(-\frac{250800}{RT}\right) \quad (I.6)$$

et μ = 80 GPa, b = 2.5 10^{-10} m et une taille caractéristique L = 1 μm, le temps estimé pour que le processus puisse se produire est de t = 114 h. A T = 500°C, les temps caractéristiques pour ce processus sont supérieurs à 8 000 h. Les temps calculés sont bien supérieurs à ceux observés expérimentalement, mais ils montrent que ce processus est probablement très lent en dessous de 400°C, voire impossible. C'est pour cette raison que l'on n'observe ces structures que lors d'un refroidissement continu (microstructure formée et coalescée à haute température).

Croissance de sous-grains et SIBM

Des travaux récents de W. Li et al. ont porté sur le vieillissement d'un mélange de bainite inférieure en lattes et de bainite granulaire [128]. La microstructure initiale a été obtenue dans un acier industriel à très bas carbone 0.065%C (peu de carbures) après laminage qui a ensuite été revenu en condition isotherme à 600°C de 1h à 8h (H_{HJ} entre 17.5 et 19). La figure I.30 montre des micrographies MET en champ clair obtenues par ces auteurs après différents temps de revenu sur le même acier bainitique. Les micrographies du haut de la figure correspondent à des observations dans des zones parfaitement en lattes alors que celles du bas correspondent à des zones initialement mixtes (granulaire et en lattes).

Après 1h de maintien, les auteurs observent que les lattes de bainite inférieure s'épaississent (leur largeur moyenne passe de 200 nm à 400 nm) et leurs joints se courbent et se fragmentent localement (les auteurs ne précisent pas s'il s'agit de mobilité des joints de petites désorientations). On semble retrouver ici un processus de coalescence finalement à l'intérieur même d'un bloc. Au voisinage de la bainite granulaire, les lattes de bainite inférieure sont consommées (« dévorées » d'après les auteurs) par la structure grossière (figure I.30.b).

Après 4h de maintien, les joints de lattes deviennent de plus en plus courbés et endommagés. Des cellules de dislocations apparaissent à l'intérieur des lattes qui s'épaississent davantage. La bainite granulaire continue à croitre dans les zones en lattes (Fig.I.30.d).

Lorsque le maintien est prolongé à 8h, les phénomènes observés à 4h sont accentués (Fig.I.30.e). Les auteurs ne retrouvent plus de traces des structures lamellaires comme le montre la figure I.30.f mais n'observent plus que des structures polygonales. La limite d'élasticité de l'acier étudié augmente d'abord par durcissement secondaire puis chute ensuite après 4h quand la microstructure devient grossière.

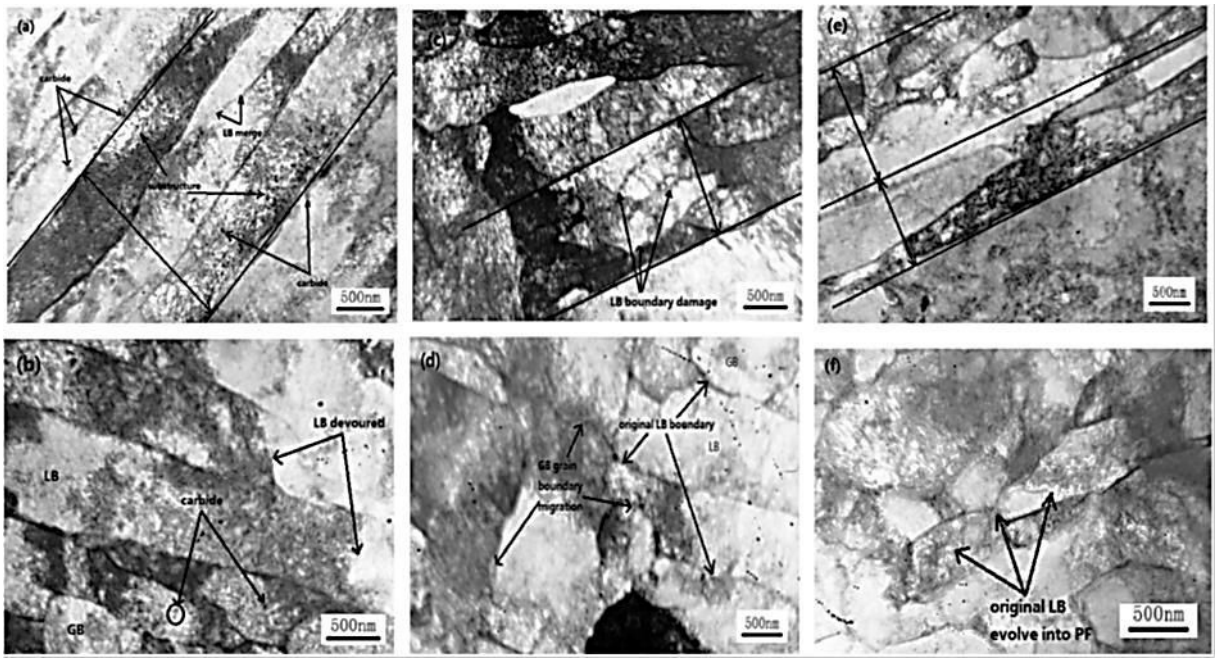


Fig.I.30 : Micrographies MET de l'acier à différents temps de vieillissement: microstructure initialement en « lattes » (a) 60 min, (c) 240 min, (e) 480 min et microstructure mixte (en « lattes » et granulaire) (b) 60 min, (d) 240 min, (f) 480 min [128].

Le processus décrit par ces auteurs de croissance de structure grossière aux dépens de structures riches en dislocations et en joints rappelle fortement le processus dit de SIBM (Strain/Stress Induced Boundary Migration).

La SIBM est un processus d'évolution microstructurale sans transformation de phase. Il explique pourquoi et comment un grain fortement désorienté avec son voisinage peut croitre dans une zone adjacente fortement déformée (riche en dislocations). Le joint préexistant migre laissant une zone exempte de dislocations derrière le joint migrant [134]. L'énergie interne stockée sous forme de dislocations et de joints diminue donc durant ce processus. La plus importante caractéristique de la SIBM est que les nouveaux grains ont des orientations similaires à celles des anciens sous-grains qui leur ont donné naissance. Il ne s'agit donc pas *stricto sensu* d'un processus de recristallisation car il n'y a pas d'étape de germination d'un nouveau grain avec une orientation aléatoire [135]. A notre connaissance, une recristallisation classique n'est jamais observée lors du revenu de microstructure bainitique.

La figure I.31 montre comment ce processus peut se dérouler dans le cas général, où de part et d'autre du joint de fortes désorientations, les structures peuvent contenir des sous-grains (cellules de dislocations par exemple ou sous-joints). La SIBM est possible si une zone du joint de grain de base est libre de pousser sous l'action de forces motrices différentielles égales à P – P.f où P et P.f sont les énergies stockées des deux grains adjacents par unité de volume. Si γ est l'énergie de surface du joint de grains fortement désorientés, le rayon critique pour que le processus de gonflement (ou de bulging) soit possible est donné par :

$$R_0^* = 2\gamma/P(1-f) \quad (I.7)$$

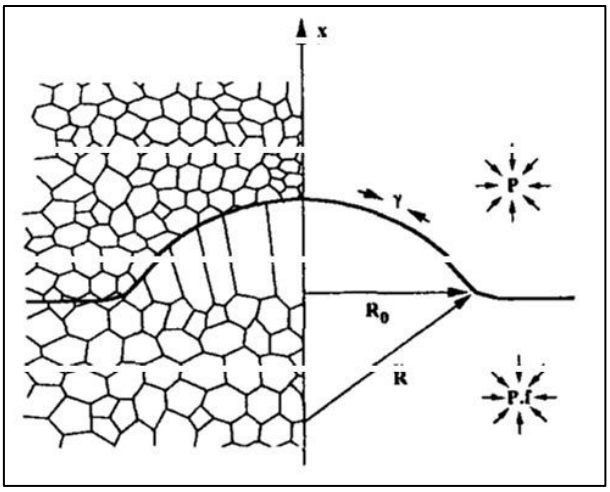


Fig.I.31: Processus de SIBM. Nucléation mettant en jeu le "gonflement" d'un joint fortement désorienté pré-existant [136].

D'après Faivre et Doherty, le mécanisme de SIBM est toujours précédé par la coalescence de sous-grains [137]. En effet, la coalescence des sous-grains crée la microstructure nécessaire pour l'activation du processus, i.e. pour qu'un sous-grain dépasse le rayon critique. Bailey et Hirsch [138] ont d'ailleurs associé la taille de ce sous-grain critique au rayon critique discuté ci-dessus. Cela signifie en pratique qu'un seul sous-grain souvent croit contrairement à la représentation de la figure I.31. On se retrouve donc plus souvent dans la configuration représentée sur la figure I.32. Cette figure montre selon Bailey et Hirsch comment un sous-grain du grain inférieur peut s'étendre dans le grain supérieur fortement déformé et riche en joints par mobilité d'interface. Cette représentation finalement très proche des observations de Li discutées précédemment leur a permis d'établir une condition d'équilibre sur les tensions de surfaces au niveau des points triples de la configuration. Cette configuration est représentée sur la figure I.32(b).

L'équilibre entre les tensions des surfaces (joints) détermine l'angle du point triple d'équilibre 2ϕ tel que $\cos \phi = \gamma_s / 2\gamma_g$. γ_g est l'énergie de surface du joint de grain fortement désorientés et γ_s est l'énergie de surface des sous-joints du grain consommé. Pour que le processus de SIBM puisse avoir lieu de façon stable, la condition suivante doit être satisfaite :

$$L \geq r / \cos \phi = 2r \gamma_g / \gamma_s \quad (I.8)$$

avec r la taille des sous-grains dans le grain supérieur (le plus riche en défauts a priori).

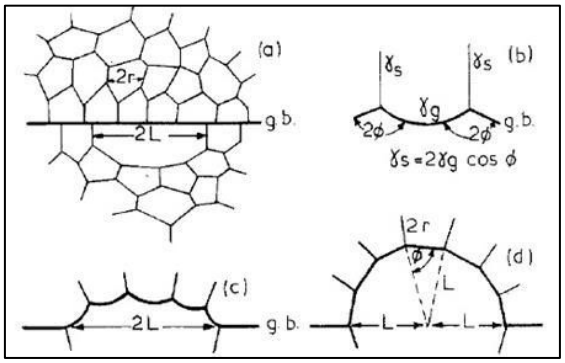


Fig.I.32: Modèle de migration de joints SIBM dans un matériau « polygonal » [138].

Pour le cas où $\gamma_g = \gamma_s$, L = 2r, cela donne la condition pour la croissance continue d'un seul gros grain, sans aucun mouvement des autres joints de grains (il s'agit du processus dit de recristallisation secondaire ou de croissance anormale [139]).

Le processus de croissance de grains a été modélisé par exemple par Rollett et al. en utilisant un modèle 2-D Monte Carlo Potts [140]. Dans ce modèle, on distingue principalement deux familles de joints de grains : des joints faiblement désorientés, peu énergétiques et peu mobiles et les joints fortement désorientés, énergétiques mais mobiles. Le calcul cherche à attendre globalement un état de plus faible énergie totale en laissant les joints migrer par sauts discrets. Cela conduit à une réorganisation des grains et sous-grains au cours du temps.

La figure I.33 montre les résultats d'un tel calcul. A gauche, se trouve la microstructure initiale contenant des joints de fortes désorientations en rouge et des joints de faibles désorientations en vert. Les joints verts peuvent être vus comme des sous-grains finalement. Les microstructures simulées ensuite correspondent à différents temps de revenu. On s'aperçoit progressivement que sous ces conditions la microstructure évolue vers une structure équiaxe dont les grains sont fortement désorientés entre eux. Des outils similaires ont été utilisés par d'autres auteurs comme [141].

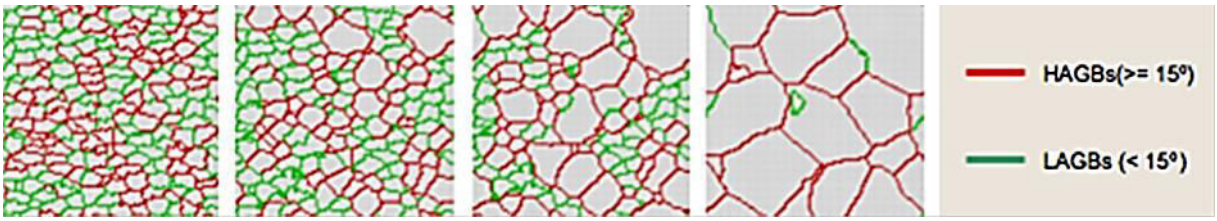


Fig.I.33: Simulation de l'évolution d'un réseau des joints de grains selon une approche de Potts: les joints de désorientation élevée (donc de mobilité élevée) en rouge migrent plus rapidement que ceux de moins grande mobilité en vert, même s'ils sont énergétiquement moins favorables [140].

Ces différentes études montrent que les processus d'évolutions morphologiques et cristallographiques des bainites en lattes peuvent être multiples et souvent couplés. Ils conduisent systématiquement à la réduction de l'énergie du système par une réorganisation des défauts (dislocations et joints) et une diminution de leur densité. Pour pouvoir les comprendre, il est nécessaire de connaitre leur mobilité mais aussi leurs énergies respectives (forces motrices des processus). Ces deux questions vont faire l'objet des parties suivantes.

IV.2.3. Mobilité des joints

La mobilité des joints de grains est le phénomène clé pour la croissance des grains par SIBM. Ce mécanisme est influencé par la courbure locale du joint de grain qui induit une force de capillarité. Cette dernière force tend à réduire la courbure locale. Dans le cadre des travaux de Winning et al. [142], une géométrie spéciale de joint a été considérée. Elle est représentée sur la figure I.34. La largeur (a) du grain 2 étant constante, la partie courbée du joint migre vers le centre de la courbure quand l'échantillon est recuit, tout en gardant la même forme. La vitesse de migration est égale à :

$$V = m\,\gamma_s/a \qquad (I.9)$$

où m est la mobilité du joint et γ_s son énergie surfacique. On retrouve dans cette expression le postulat de Rollett et al. [140] que la mobilité effective des joints est proportionnelle à leur énergie, celle-ci étant en fonction de la désorientation.

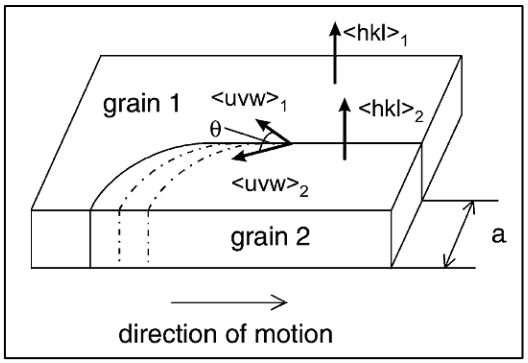


Fig.I.34: La géométrie du joint pour une force motrice constante [142].

La mobilité est thermiquement activée :

$$m=m_0 \exp\left(\frac{-\Delta H}{kT}\right) \qquad (I.10)$$

où ΔH est l'enthalpie d'activation du processus et m_0 une constante.

La migration des joints de grains ou de sous-grains dépend donc de la nature des joints (désorientation entre grains), de la température (mécanisme thermiquement activé) mais aussi de la configuration géométrique (courbure locale). Cette mobilité peut aussi être réduite à cause de mécanismes d'épinglage des joints sur les carbures inter- ou intra-lattes dans le cas des aciers bainitiques.

IV.2.4 Energies surfaciques des joints

Contrairement aux interfaces entre deux phases de compositions et de cristallographies différentes, l'énergie de joints de grains ou de sous-grains (lattes, blocs, cellules) est principalement d'origine élastique et non chimique. Elle dépend donc de la désorientation entre les deux grains ou sous-grains considérés et aux distorsions très locales du réseau atomique.

L'approche de Read et Shockley est la plus classique pour décrire l'énergie surfacique de ces interfaces en fonction de l'angle de désorientation. Ce modèle a été établi pour décrire les joints de faibles désorientations (typiquement inférieures à 15°) qui sont assimilés à des murs de GNDs réparties uniformément sur l'interface (vecteur de Burgers b avec un espacement h). On peut établir que l'énergie surfacique est alors égale à :

$$\gamma_s=\frac{\mu b}{4\pi(1-\nu)}\theta\left(1+\ln\left(\frac{b}{2\pi r_0}\right)-\ln(\theta)\right) \qquad (I.11)$$

avec θ l'angle de désorientation (égal à b/h pour les faibles θ), μ le module de cisaillement, ν le coefficient de Poisson, r_0 le rayon de cœur des dislocations. Cette formule n'est cependant pas valable aux grandes désorientations quand l'approximation du mur n'est plus valide. Au-delà du maximum de cette fonction, on considère que l'énergie sature. Finalement, en pratique on retient souvent une description de l'énergie surfacique des grains de la forme :

$$\gamma_s=\begin{cases} E_{HAB}\frac{\theta}{\theta^\circ}\left(1-\ln\left(\frac{\theta}{\theta^\circ}\right)\right) & \text{si} \quad \theta\le\theta^\circ \\ E_{HAB} & \text{si} \quad \theta>\theta^\circ \end{cases} \qquad (I.12)$$

où θ est la désorientation entre les deux sous-grains, E_{HAB} est l'énergie par unité de surface du joint de forte désorientation (High Angle Boundary) et θ° est une valeur seuil égale à $b/2\pi r_0$.

La valeur de E_{HAB} est difficile à établir analytiquement. Des calculs de dynamique moléculaire présentés sur la figure I.35, montrent que l'on peut atteindre des valeurs de 1.44 $J.m^{-2}$. Ces calculs ont été obtenus en considérant les joints de lattes comme des joints de flexion pure avec une désorientation variant de 0° à 12°/ $[011]_{\alpha'}$. Dans cette formule, θ° est souvent fixée à 15°, car le rayon de cœur n'est pas connu a priori.

Cette approche de Read-Shockley étendue n'intègre pas cependant le fait qu'il existe des configurations de grandes désorientations qui permettent d'assurer une certaine compatibilité cristallographique entre les réseaux (désorientations non aléatoires). Comme on peut retrouver ces interfaces particulières de faibles énergies entre variants cristallographiques de la transformation martensitique, différents auteurs ont cherché à calculer ces énergies.

La stabilité énergétique des interfaces entre les variants d'une structure martensitique d'atomes de fer en réseau cubique centré, a été étudiée par Pham et al. [143] par dynamique moléculaire. Pour deux variants V_a et V_b, ils ont calculé l'énergie d'interface par unité de surface d'interface, γ_{ab} comme :

$$\gamma_{ab}=\frac{1}{S}\left(E_{a\text{-}b}-\frac{1}{2}(E_a+E_b)\right) \quad (I.13)$$

où $E_{a\text{-}b}$ est l'énergie totale du système composé de deux variants séparés par une seule interface de surface S et E_i est l'énergie totale du système de même dimension mais composé uniquement d'un seul variant i sans interface.

Partant initialement de l'hypothèse que la martensite suit exactement la RO de KS, l'étude s'est intéressée aux désorientations spécifiques : 10.5° $<011>_{\alpha}$, 49.5° $<011>_{\alpha}$, 60° $<011>_{\alpha}$ et 70.5° $<011>_{\alpha}$ qui est équivalente à la désorientation de maclage 60° $<111>_{\alpha}$. La figure I.35 montre les résultats de leurs calculs pour ces quatre interfaces entre variants considérés selon deux plans d'habitat possibles (configuration twist ou tilt). Les énergies calculées sont loin d'être constantes comme attendu par l'approche classique. La désorientation 70.5° <011> a la plus faible énergie, mais elle est rarement observée par MEB/ EBSD [144]. De même, on s'attendrait à trouver des joints de faible énergie de type 10.5° <011>. Toutefois, expérimentalement on observe plutôt la désorientation 7° <011> selon Smith et al. [144].

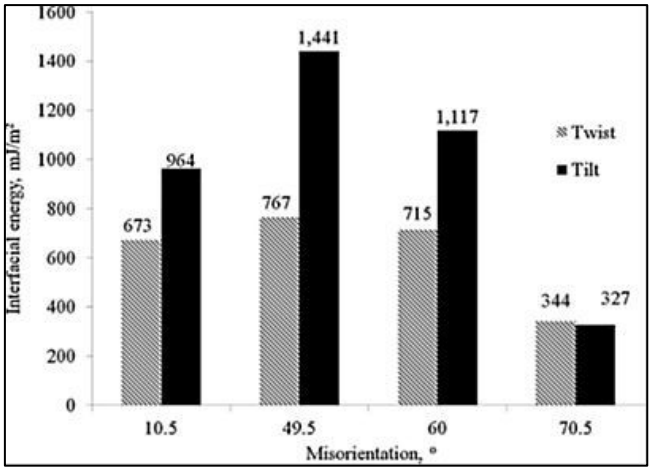


Fig.I.35: Energies d'interface entre différents variants KS [143].

Ceci rejoint l'affirmation, vue au paragraphe III.1.4, que la RO de KS n'est jamais exactement suivie.

Ces valeurs d'énergies surfaciques obtenues par dynamique moléculaire sont cohérentes avec les travaux de Rollett et al. [145] qui ont calculé les énergies des joints de grains dans du fer cubique centré [146] par calculs *ab initio*. Leurs résultats sont représentés sur la figure I.36 qui montre les énergies des joints en fonction de l'angle de désorientation. On retrouve aux faibles angles la tendance prévue par le modèle de Read-Schockley. Aux fortes désorientations, les résultats sont plus dispersés qu'attendu. Ils montrent que l'énergie dépend bien des quatre composantes nécessaires pour décrire un joint (plan d'habitat défini par deux vecteurs, axe de rotation et angle) et non de l'angle uniquement.

De ces calculs, il apparait que les désorientations entre les plans $\{110\}_{\alpha}$ ont les plus faibles énergies d'interface, avec une valeur minimale à 60°. La figure I.35 montre les énergies de ce type de joints en fonction de la désorientation angulaire (en bleu), en comparaison avec d'autres types de joints. Les joints désorientés de 60° peuvent avoir des énergies élevées si l'on change l'axe de rotation et les plans d'habitat [145].

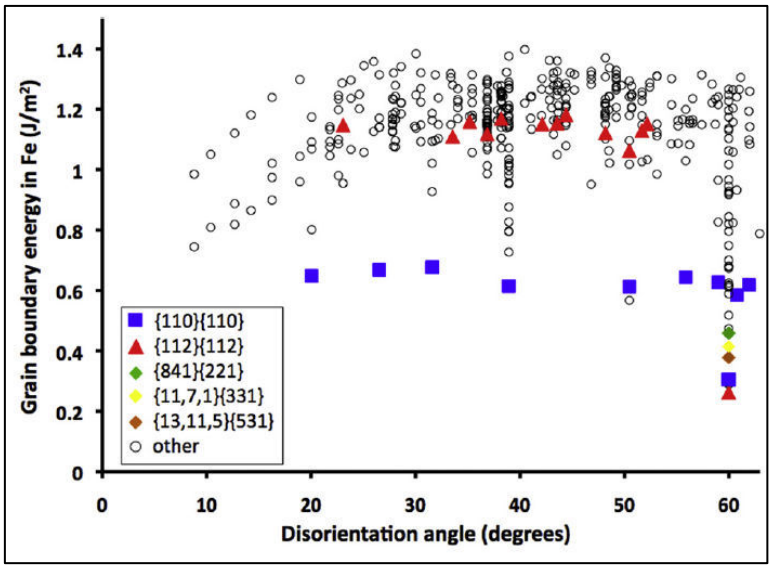


Fig.I.36: Energies de joints calculées pour le Fer CC par une méthode ab initio: (bleu) joints entre deux plans {110} (rouge) joints entre deux plans {112} (vert, jaune et marron) joints respectifs entre les plans {841} et {221}, {11,7,1} et {331} et {13,11,5} et {531} (cercle vide) autres joints. Résultats de [145].

IV.2.5 Evolution de la cémentite lors du revenu

Nous venons de discuter dans les trois parties précédentes, des mécanismes pouvant conduire à une évolution morphologique et cristallographique de la ferrite bainitique lors d'un traitement thermique de revenu (ou de vieillissement). Dans cette section, nous discutons des deux mécanismes qui affectent la microstructure des carbures. Dans la plupart des cas, les possibles carbures de transition observée dans la bainite (cf. tableau I.2 de la section I.1) se transforment rapidement lors d'un maintien thermique en cémentite. Nous ne nous intéressons donc dans la suite qu'à ce type de carbure. La cémentite subit d'abord une partition des éléments d'alliage puis une évolution morphologique (sphéroïdisation et grossissement). Dans les deux cas, les forces motrices de l'évolution sont d'origine chimique.

IV.2.5.1. Evolution de la composition chimique durant le revenu

Lors de la transformation bainitique, les carbures précipitent en condition de paraéquilibre car le phénomène est extrêmement rapide. Leurs concentrations en éléments substitutionnels (ce que l'on appelle communément la u-fraction) sont identiques à l'austénite mère. Ceci signifie

qu'il n'y a pas de partitionnement des éléments d'alliage. Leurs compositions après la fin de transformation sont par conséquent loin de celles d'équilibre [6].

Lors du maintien isotherme d'une bainite après transformation (ou revenu bainitique), on observe une diffusion des atomes substitutionnels entre cémentite et matrice ferritique pour approcher la composition chimique d'équilibre. D'après les travaux de Baker et Nutting [147], qui sont parmi les premiers à avoir investigué l'évolution de la composition chimique des carbures lors du maintien isotherme de la bainite, la cémentite s'enrichit en Mn, Mo et surtout en Cr dans un acier normalisé T22 de composition Fe-2.25%Cr-1%Mo. Ce processus s'arrête en cas de précipitation secondaire. Dans le cas général, les cinétiques associées de cette partition sont données par:

$$t_c^{1/2} = \frac{c^{\theta}\,(\overline{c_X} - c_X)\pi^{1/2}}{4D^{1/2}(c_X^{\alpha\theta} - \overline{c_X})} \qquad (I.14)$$

où t_c est le temps nécessaire pour que le carbure atteigne une concentration c_X en élément de substitution, c_θ est l'épaisseur de la particule de cémentite, D est le coefficient de diffusion de l'élément dans la matrice (supposé être identique à celui au sein de la particule, ce qui est une hypothèse très forte), et $c_X^{\alpha\theta}$ est la concentration de l'élément substitutionnel dans la ferrite qui est en équilibre avec la cémentite. La figure I.37 montre la configuration étudiée par Bhadeshia pour établir cette formule et les profils de composition attendus en éléments d'alliage dans la cémentite et la matrice ferritique (cas d'éléments carburigènes comme le Mn par exemple). Cette analyse néglige aussi les possibles chevauchements des profils de diffusion dus aux différentes particules dans la matrice.

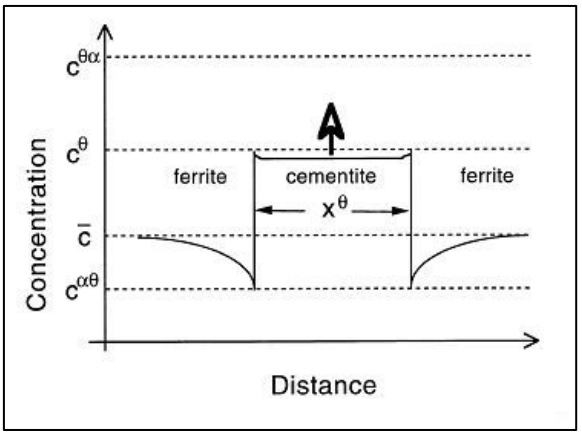


Fig.I.37 : Profil de concentration durant l'enrichissement en élément carburigène de la cémentite selon le modèle proposé par Badheshia [6]. Cette configuration simplifiée permet d'établir l'équation (I.14).

IV.2.4.2 Maturation des particules de cémentite

Lors d'un maintien isotherme, il est bien établi que la morphologie et la distribution de taille des particules de cémentite dans une matrice ferritique évolue significativement. On retrouve ce phénomène lors du revenu de la martensite en stade IV, lors du chauffage d'aciers ferrito-perlitiques mais aussi lors du revenu de la bainite. Ces mécanismes commencent souvent après le partitionnement des éléments d'alliage décrits ci-dessus et sont dus à l'effet Gibbs-Thomson [148]. Les précipités de morphologie allongés vont donc évoluer vers une forme sphérique et les petits précipités vont se dissoudre au profit des plus grands, qui possèdent un rayon de courbure plus grand et sont donc plus stables.

V. Conclusion

- Nous avons revu les classifications morphologiques des bainites basées sur la morphologie de la ferrite et sur la nature et la répartition des secondes phases. Nous en avons rencontré six dans la littérature: la classification de Mehl (1939), la classification d'Aaronson (1969), la classification d'Ohmori (1971), la classification de Bramfit et Speer (1990), la classification de Zajac (2005) et la classification de l'ISIJ (1992). Il n'y a donc pas de classification unique de la bainite, tout comme pour les modèles de formation qui ont toujours suscité la controverse.
- A cette série de classifications morphologiques, s'ajoutent les classifications cristallographiques qui proposent également des critères différents pour différencier les bainites (et la martensite). Nous en citons quatre : la classification de Gourgues (2000), la classification de Zajac (2005), la classification de Furuhara (2006) et la classification de Takayama (2012).
- Dans le reste de notre étude, nous allons adopter la classification conventionnelle de Mehl (1939) pour introduire nos microstructures bainitiques, mais nous allons poursuivre leur caractérisation approfondie plutôt par une approche cristallographique.
- Nous avons discuté des mécanismes de formation mais aussi de maturation des structures bainitiques, en fort lien avec les mécanismes connus de revenu de la martensite.
- Les microstructures bainitiques sont complexes, hiérarchisées, et multi-échelles. Elles sont riches en défauts (joints et dislocations). Parmi ces défauts, les joints sont les plus énergétiques dans la microstructure finale. En effet, ils ne subissent pas une restauration importante comparée aux dislocations (qui commence lors de la transformation bainitique isotherme et continue pendant la maturation ou revenu bainitique). Peu d'études sont consacrées à la maturation de la bainite en lattes, et la séquence des mécanismes et leurs cinétiques sont peu claires.

Les travaux de notre thèse s'inscrivent dans l'investigation poussée des mécanismes de maturation des bainites sous condition isotherme prolongée.

VI. Références

[1] E.S. Davenport, E.C. Bain, Trans. Am. Inst. Min. Metall. Eng., 90, 1930, 117-154.

[2] E.C. Bain, American Society for Metals, Cleaveland, Ohio, 1939.

[3] H. Okamoto, M. Oka, Metall. Trans. A 17, 1986, 1113-1120.

[4] S.M.C. van Bohemen, M.J. Santofimia, J. Sietsma, Scr. Mater. 58, 2008, 488-491.

[5] Santigopal Samanta, Pinaki Biswas, Sushil Giri, Shiv Brat Singh, Saurabh Kundu, Acta Materialia 105, 2016, 390-403.

[6] H. Bhadeshia, Bainite in Steels, Second edition first published by IOM Communications Ltd, London, 2001.

[7] B. M. Leister & J. N. Du Pont, Materials Science and Technology 31, 12, 2015, 1425-1432.

[8] H. Bhadeshia, Materials Science & Metallurgy Part II Course C9, Alloys, 2000_ http://www.phase-trans.msm.cam.ac.uk/bainite.html

[9] Mehl R.F., Hardenability of alloy steels, ASM, Cleveland, Ohio, USA, 1939, 1-54.

[10] J. M.Schissler, J. Arnould and G. Metauer, Mem. Sci. Rev. Métallurgie 6, 1975, 779-793.

[11] G. Konoval, L. Zwell, L. A. Gorman and W. C. Leslie, Nature 184, 1959, 1862-1863.

[12] A. E. Austin and C. M. Schwartz, Proc. ASTM, 52, 1952, 592-596.

[13] S. J. Matas and R. F. Hehemann, Nature 187, 1960, 685-686.

[14] C. S. Robert, B. L. Averbach and M. Cohen, Trans. ASM 45, 1957, 576.

[15] J. Deliry, Mem. Sci. Rev. Métallurgie 62, 1965, 527-550.

[16] J. Pomey, Mem. Sci. Rev. Métallurgie 63, 1966, 507-532.

[17] H.Bhadeshia and D. V. Edmonds, Acta Metall. 28, 1980, 1265-1273.

[18] G. Spanos, H. S. Fang and H. I. Aaronson, Metall. Trans., 21A, 1990, 1381-1390.

[19] Y. Ohmori, H. Ohtani and T. Kunitake: Trans. ISIJ, 11, 1971, 250-259.

[20] H. Ohtani, S. Okaguchi, Y. Fujishiro, Y. Ohmori, Metallurgical Transactions A, 1990, 877-888.

[21] B. L. Bramfitt and J. G. Speer: Metall. Trans. A, 21A, 1990, 817-829.

[22] S. Zajac, V. Schwinn and K.H. Tacke, Materials Science Forum, 2005, 387-394.

[23] G. Krauss, S. W. Thompson, ISIJ Int., 35 (8), 1995, 937-945.

[24] L.J. Habraken: Rev. Met. 53, 1956, 930-944.

[25] L.J. Habraken: Comput. Rend., 19, 1957, 126.

[26] L. Habraken: Special Report 93, Iron and Steel Institute, London, 1965, 147.

[27] L.J. Habraken and M. Economopolus, Ann Arbor, Michigan USA, 1967, 69-107.

[28] Z.X. Qiao and Y.C. Liu: J. Alloys Compd., 475, 2009, 560-564.

[29] Atlas for Bainitic Microstructures-Vol.1 Continuous Cooled Zw Microstructures of Carbon Steels Bainite Committee of Iron and Steel Institute of Japan, Tokyo, 1992, 1-165.

[30] H. Asahi, T. Hara & M. Sugiyama, International Journal of Offshore and Polar Engineering 14 (1), 2004, 11-17.

[31] E.C. Bain, N.Y. Dunkirk, Transaction AIME, 70, 1924, 25-46.

[32] C. Cabus, Etude et modélisation des textures de transformations de phases dans les aciers destinés à l'emboutissage, Thèse de doctorat, Université Paris XIII, 2005.

[33] M. Kelly, Materials Transactions, JIM, 33, 1992, 235-242.

[34] A. Lambert-Perlade, A. F. Gourgues, A. Pineau, Acta Mater., 52, 2004, 2337-2348.

[35] B.P.J Sandvik, Metallurgical Transactions, 13A, 1982, 777-787.

[36] G. Kurdjumov, G. Sachs, Über den Mechanismus der Stahlhärtung, Zeitschrift für Physik, 64, 1930, 325-343.

[37] Z. Nishiyama, Sci. Rep. Tohoku Imp. Univ. Tokyo, 23, 1934, 637-664.

[38] G. Wassermann, G. Mitt. K.-Wilh.-Institut fûr Eisenforschung, 17, 1935, 149-155.

[39] W. Pitsch, The martensite transformation in thin foils of iron-nitrogen alloys, Philosophical Magazine, 4, 1959, 577-584.

[40] A.B. Greninger, A.R. Troiano, Metals Transactions, 185, 1949, 5-15.

[41] G. Nolze, Crystal research and technology, 43, 2008, 61-73.

[42] S. Lubin, Etude des mécanismes de la transformation de phase bainitique dans les aciers bas carbone, PhD, Mines Paritech, Mines ParisTech, 2009.

[43] P. Blaineau Restitution de la microtexture parente à partir de la microtexture héritée mesurée par EBSD Une application aux aciers faiblement alliés, Université Paul Verlaine, Metz, France, 2010.

[44] S. Morito, H. Tanaka, R. Konishi, T. Furuhara, T. Maki, Acta Materialia, 51, 2003, 1789-1799.

[45] A.F. Gourgues, H.M. Flower, T.C. Lindley, Materials Science and Technology, 16, 2000, 26-40.

[46] H. Nakashima, D. Terada, F. Yoshida, H. Hayakawa, H. Abe, ISIJ International, 41, Supplement S, 2001, 97-100.

[47] A. Dronhofer, J. Pešička, A. Dlouhý, G. Eggeler, Z. Metallkd., 94, 2003, 511-520.

[48] S. H. Lee, J.-Y. Kang, H. N. Han, K. H. Oh, H.-C. Lee, D.-W. Suh, S.-J. Kim, ISIJ International, 45, 2005, 1217-1219.

[49] M. Humbert, B. Gardiola, C. Esling, G. Flemming, K.E. Hensger, Acta Materialia, 50, 2002, 1741-1747.

[50] B. Gardiola, C. Esling, M. Humbert, K.E. Hensger, Advanced Engineering Materials, 5, 2003, 583-587.

[51] S. Godet, J. C. Glez, Y. He, J. J. Jonas, P. J. Jacques, Journal of Applied Crystallography, 37, 2004, 417-425.

[52] C. Cabus, H. Réglé, B. Bacroix, (ed. M. A. Baker), 2004, 259-267.

[53] S. Zaefferer, J. Ohlert, W. Bleck, Acta Materialia, 52, 2004, 2765-2778.

[54] P.M. Kelly, A. Jostsons, R.G. Blake, Acta Metallurgica and Materialia, 38, 1990, 1075-1081.

[55] G. Miyamoto, N. Takayama, T. Furuhara, Scripta Materialia, 60, 2009, 1113-1116.

[56] C. Cayron Acta Materialia, 96, 2015, 189-202.

[57] H.J. Bunge, W. Weiss, H. Klein, L. Wcislak, U. Garbed, J. Richard Schneider, Journal of Applied Crystallography, 36, 2003, 137-140.

[58] B.P.J. Sandvik, C.M. Wayman, Metallurgical Transactions A, 14, 1983, 809-822.

[59] J.J. Fundenberger, A. Morawiec, E. Bouzy, J.S. Lecomte, Ultramicroscopy, 96, 2003, 127-137.

[60] A.J. Wilkinson, Scripta Materialia, 44, 2001, 2379-2385.

[61] F.J. Humphreys, Scripta Materialia, 51, 2004, 771-776.

[62] M.X. Zhang, P.M. Kelly, Progress in Materials Science, 54, 2009, 1101-1170.

[63] G. Brückner, J. Pospiech, I. Seidl, G. Gottstein, Scripta Materialia, 44, 2001, 2635-2640.

[64] H. Youliang, S. Godet, J.J. Jonas, Journal of Applied Crystallography, 39, 2006, 72-81.

[65] D.W. Suh, J.H. Kang, K. Hwan Oh, H.C. Lee, Scripta Materialia, 46, 2002, 375-378.

[66] G. Nolze, Crystal research and technology, 43, 2008, 61-73.

[67] M. Humbert, N. Gey, Journal of Applied Crystallography, 35, 2002, 401-405.

[68] M. Humbert, L. Germain, N. Gey and E. Boucard, Acta Mater. 82, 2015, 137-144.

[69] A.F. Gourgues, International Materials Reviews, 52, 2007, 65-128.

[70] H. Sato, S. Zaefferer, Acta Materialia, 57, 2009, 1931-1937.

[71] T. Maki, Mater Sci Forum, 56, 1990, 157-168.

[72] A.R. Marder, G. Krauss, Trans. ASM 60, 1967, 651-660.

[73] H.K.D.H. Bhadeshia, Bainite in Steels, Institute of Materials, London, 1992.

[74] S.Nambu, N.Shibuta, M.Ojima, J.Inoue, T.Koseki, H.K.D.H.Bhadeshia, Acta Materialia, 61, 2013, 4831-4839.

[75] T. Furuhara, H. Kawatab, S. Morito, T. Maki, Materials Science and Engineering A 431, 2006, 228-236.

[76] H. Kitahara, R. Ueji, N. Tsuji, Y. Minamino, Acta Materialia, 54, 2006, 1279-1288.

[77] N. Takayama, G. Miyamoto, T. Furuhara, Acta Materialia 60, 2012, 2387-2396.

[78] H.K.D.H. Bhadeshia, R.W.K. Honeycombe, Steels: Microstructure and Properties, Butterworth-Heinemann, 2006.

[79] S. Morito, J. Nishikawa, T. Maki ISIJ, 43, 2003, 1475-1477.

[80] F. Christien, M.T.F. Telling, K.S. Knight, Scripta Mater., 68, 2013, 506-509.

[81] S. Takebayashi, T. Kunieda, N. Yoshinaga, K. Ushioda, S. Ogata, ISIJ Int., 50 (6), 2010, 875-882.

[82] T. Berecz, P. Jenei, A. Csóré, J. Lábár, J. Gubicz, P. J. Szabó, Materials Characterization, 113, 2016, 117-124.

[83] P.M. Kelly, Inorganic Materials Research Division Series, Berkeley, Interscience Publishers, University of California, 1963, 917-946.

[84] M.J. Roberts and W.S. Owen, Metall. Trans., 1A, 1970, 3203-3213.

[85] H. Bhadeshia. Journal de Physique IV Colloque 07 (C5), 1997, 367-376.

[86] S.H. He, B.B. He, K.Y. Zhu , M.X. Huang, Acta Materialia, 135, 2017, 382-389.

[87] J. Bouquerel, K. Verbeken, B.C. De Cooman, Acta Materialia, 54, 2006, 1443-1456.

[88] S.D. Catteau, Journal of Alloys and Compounds, 658, 2016, 832-838.

[89] M. Hillert, ISIJ International, 35(9), 1995, 1134-1140.

[90] T. Ko, S.A. Cottrell, Journal of the Iron and Steel Institute, 172 (3), 1952, 307-316.

[91] H. Aaronson, W. Reynolds, G. Shiflet, G. Spanos, Metallurgical and Materials Transactions A, 21(6), 1990, 1343-1380.

[92] M. Takahashi and H. K. D. H. Bhadeshia, Mater. Sci. Technol., 6, 1990, 592-603.

[93] S. J. Matas and R. F. Hehemann: Trans. AIME, 221, 1961, 179-185.

[94] H.K.D.H. Bhadeshia, Proceedings of an International Conference on Phase Transformation in Ferrous Alloys, Philadelphie, A.R. Marder, J.I. Goldstein (Eds.), 1984, 335-340.

[95] D. Quidort, Y. Bréchet, Scripta Materialia, 47(3), 2002, 151-156.

[96] G. Purdy, M. Hillert, Acta Metallurgica, 32(6), 1984, 823-828.

[97] G.R. Purdy, Y.J.M. Brechet, Acta Metallurgica et Materialia, 43 (10), 1995, 3763-3774.

[98] W.T. Reynolds, S.K. Liu, F.Z. Li, S. Hartfield, H.I. Aaronson, Metallurgical Transactions, 21A (6), 1990, 1479-1491.

[99] W.W. Sun, H.S. Zurob, C.R. Hutchinson, Acta Materialia, 139, 2017, 62-74.

[100] O. Bouaziz, D. Quidort, P. Maugis, Revue de Metallurgie, 100 (1), 2003, 103-108.

[101] P. Cizek, B.P. Wynne, C.H.J. Davies, B.C. Muddle, P.D. Hodgon, Metallurgical and Materials Transactions, 33, 2002, 1331-1349.

[102] S. Okaguchi, H. Ohtani, Y. Ohmori, Materials Transactions, 32, 1991, 697-704.

[103] Z. Nishiyama: Marutensaito Hentai, Oyo-hen, Martensitic Transformation, Application Part Chap. 4, Maruzen Co. Ltd., Tokyo, 1974.

[104] G.R. Speich and W.C. Leslie: Metall. Trans. A, 3A, 1972, 1043-1054.

[105] J. H. Hollomon and L. D. Jaffe, Trans. TMS-AIME 162, 1945, 223-249.

[106] G. Badinier, C.W. Sinclair, S. Allain, F. Danoix, M. Gouné, The Mechanisms of Transformation and Mechanical Behavior of Ferrous Martensite, Encyclopedia, Reference Module in Materials Science and Materials Engineering, 2017.

[107] S. Nagakura, Y. Hirotsu, M. Kusunoki, T. Suzuki, And Y. Nakamura, Metallurgical Transactions A14A, 1983, 1025-1031.

[108] J. M. R. Genin and P. R. Flinn: Trans. TMS-AIME, 242, 1968, 1419-1430.

[109] P. G. Winchell and M. Cohen: Trans. ASM, 55, 1962, 347-361.

[110] K.H. Jack: J. Iron & Steel Inst., 169, 1951, 26-36.

[111] S. Oketani, S. Hitomi, and S. Nagakura: Nippon Kinzoku Gakkai-shi (Jpn. Inst. Metals), 26, 1962, 494-498.

[112] Y. Hirotsu, S. Nagakura, and S. Oketani: Trans. Iron Steel, Jpn. Inst., 11, 1971, 1140-1144.

[113] Y. Hirotsu and S. Nagakura: Acta Met., 11, 1972, 645-655.

[114] H. Ino, T. Mouya, E. Fujita, Y. Maeda, Y. Oni, and Y. Inokuti: Z Phys. Soc. Japan, 25, 1968, 88-99.

[115] M. Cohen: Japan lnst. Metals, Spec. Supp., 9, 1968, 23-29.

[116] D. Kalish and M. Cohen: Mater. Sci. Eng., 6, 1970, 156-166.

[117] G. R. Speich: Trans. TMS-A1ME, 245, 1969, 2553-2564.

[118] G. S. Ansell and A. Arrot: Trans. TMS-AIME, 227, 1963, 1080-1082.

[119] G. S. Ansell and E. M. Breinan: Trans. ASM, 58, 1965, 110-113.

[120] G. S. Ansell, V. I. Lizunov, and R. W. Messier: Jap. lnst. Metals Spec. Supp., 9, 1968, 933-939.

[121] K. Kuo: J. Iron Steel Inst., 184, 1956, 258-268.

[122] K.J. Irvine and F. B. Pickering, JISI 187, 1957, 292-309.

[123] M. E. Bush and P. M. Kelly, Acta. Metall. 19, 1971, 1363-1371.

[124] J. H. Woodhead and A.G. Quarell, JISI 203, 1965, 605-620.

[125] J. Nye, Acta Metallurgica1, 1953, 153-162.

[126] E.Kroner, Ergebnisse der Angewandten Mathematik 5, 1958, 1327-1347.

[127] H. Gao, Y. Huang, Scripta Mater, 48, 2003, 113-118.

[128] W. Li, M. Cai, D. Wang, J. Zhang, S. Zhao, P. Shao, Materials Science & Engineering A 679, 2017, 410-416 .

[129] H. Pous-Romero and H. Bhadeshia, J. Pressure Vessel Technol. 136, 2014.

[130] J. H. Pak, H. K. D. H. Bhadeshia, L. Karlsson and E. Keehan, Science and Technology of Welding and Joining, 13, 2008, 593-597.

[131] E. Keehan, L. Karlsson, H. K. D. H. Bhadeshia and M.Thuvander: Mater. Character., 59, 2008, 877-882.

[132] J.C.M. Li, J. Appl. Phys., 33, 1962, 2958-2965.

[133] D. Hull, D.J. Bacon, Introduction to Dislocations, published by Elsevier Ltd, 2011, 137-155.

[134] P.A. Beck and P.R. Sperry J. Appl. Phys. 21, 1950, 150-152.

[135] F.J. Humphreys, M. Hatherly, Recrystallization and Related Annealing Phenomena (Second Edition), Elsevier Ltd, 2004.

[136] P. Bate and B. Hutchinson_ScriptaMattialia, 36, 1997, 195-198.

[137] P. Faivre, R.D. Doherty_Journal of Materials Science 14, 1979, 897-919.

[138] J. E. Bailey and P. B. Hirsch, Proc. Roy. Soc.267A, 1962, 11-30.

[139] J.W. Martin and R. D. Doherty, "Stability of Microstructure in Metallic Systems", C. U. P., 1976, 236.

[140] S. Wang, E. A. Holm, J. Suni, M. H. Alvi, P. N. Kalu, A. D. Rollett, Acta Materialia 59, 2011, 3872–3882.

[141] I.M. Montaño-Zuñiga, G. Sepulveda-Cervantes, V. M. Lopez-Hirata, D. I. Rivas-Lopez, J. L. Gonzalez-Velazquez Computational Materials Science 49, 2010, 512–517.

[142] M. Winning, G. Gottstein, L.S. Shvindlerman, Acta Materialia 50, 2002, 353–363.

[143] A. H. Pham,T. Ohba, S. Morito, T. Hayashi , Journal of Alloys and Compounds 577S, 2013, 583-586 .

[144] C.S. Smith, Zener pinning, Trans. Metall. Soc. AIME, 175, 1948, 15-51.

[145] S. Ratanaphan, D. L. Olmsted, V. V. Bulatov, E. A. Holm, A. D. Rollett, G. S. Rohrer, Acta Materialia 88, 2015, 346-354.

[146] S.J. Plimpton. LAMMPS: Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator. Sandia National Laboratories, 2007.

[147] R. G. Baker and J. Nutting, JISI 192, 1959, 257-268.

[148] Michel Perez, Scrip.Mater. 52, 2005, 709-712.

Chapitre II : Matériaux et techniques expérimentales

I. Aciers étudiés 67
I.1. Réflexion sur le choix des nuances d'acier 67
I.2. Nuances modèles sélectionnées et leur élaboration 69
II. Traitements thermiques 71
II.1. Dilatomètres utilisés et exploitation du signal dilatométrique 71
II.2. Les cycles thermiques en dilatomètre 74
II.2.1 Les différents traitements 'types' réalisés 74
II.2.2 Récapitulatif de l'ensemble de la campagne de traitement thermique 76
II.3. Traitements thermiques additionnels en bain de sel 78
II.3.1 Condition de traitement 78
II.3.2 Essais mécaniques de traction 79
III. Caractérisation microstructurale par microscopie électronique 80
III.1. Le MEB pour l'étude morphologique des lattes ferritiques et des carbures 80
III.2. Le MET pour l'investigation poussée des carbures 81
III.2.1 Techniques de préparation des lames minces 81
II.2.2. Le mode Imagerie 81
III.2.3 En mode Diffraction 82
III.2.4 Analyses chimique en spectroscopie de dispersion d'énergie (EDS) 84
IV. Caractérisation des microtextures de transformation de phase 84
IV.1. Notion d'orientation et de désorientation: 85
IV.2 Rappel concernant la technique l'EBSD 85
IV.3. Acquisition des cartographies EBSD en mode 'résolution améliorée' 87
IV. 4. Exploitation standard des données EBSD 88
V. Organisation des variants au sein des ex-grains austénitiques 89
V.1. Le principe de la reconstruction 90
V.2. Les étapes de reconstruction avec Merengue2 91
V.3 Organisation spatiale des variants en blocs et en paquets avec Decrypt 93
VI. Etude DRX à haute énergie sur ligne de lumière synchrotron 95
VI.1. Post traitement et analyse métallurgique des données de diffraction 96
VII. Références 98

Introduction

Ce chapitre décrit les aciers étudiés et les différentes techniques mises en œuvre pour analyser leur dénaturation morphologique et cristallographique lors de traitements thermiques.

Nous commencerons par décrire les différents aciers modèles retenus pour conduire ce travail. Dans une seconde partie, nous détaillerons les différents traitements thermiques effectués pour obtenir nos produits de transformation bainitiques et martensitiques et la campagne d'essais de traction réalisée sur une sélection de microstructures finales.

Dans les trois parties suivantes, nous présenterons nos techniques de caractérisation :

- la microscopie électronique à balayage et à transmission (MEB et MET) pour caractériser l'état microstructural des différentes phases (ferrite, carbures) suite à chaque traitement thermique appliqué,
- la technique EBSD en MEB pour caractériser les microtextures de transformation et l'exploitation avancée des données d'orientation pour distinguer nos différents produits de transformation,
- enfin la Diffraction de Rayons X à Haute Energie (DRXHE) sur ligne de lumière synchrotron destinée au suivi *in situ* des transformations de phases.

I. Aciers étudiés

I.1. Réflexion sur le choix des nuances d'acier

Les aciers bainitiques utilisés en tôlerie dans la construction automobile (aciers plats au carbone) présentent souvent des compositions chimiques simples sur une base FeMnC microallié. Les compositions exactes sont en général confidentielles mais on trouve quelques exemples détaillés dans la littérature: Fe-0.25%C-1.96%Mn-0.37%Si-0.021%S-0.48%Cr-0.11%V [1] ou Fe-0.25%C-2.07%Mn-0.021%Al [2]. Nous rappelons ici que toutes les compositions, sauf mention contraire, sont données en pourcentages massique.

Certains sidérurgistes ont aussi industrialisé récemment des produits bainitiques sans carbure pour emboutissage, mais la communication sur ces produits est très limitée. On retrouve aussi maintenant des aciers bainitiques pour les pièces de forge (vilebrequin par exemple) mais surtout dans le domaine des tôles fortes pour la fabrication de pipelines. Dans ces cas, les alliages sont complexes car ils nécessitent de la précipitation secondaire pour atteindre leurs performances finales.

Pour en revenir aux aciers bainitiques les plus simples, à l'instar du carbone, le manganèse est un élément essentiel. Elément gammagène, il ralentit les cinétiques de transformation de phase (comme la transformation ferritique polygonale, souvent par un effet de type solute drag) et améliore donc la trempabilité de l'alliage. En solution solide dans la ferrite, il augmente la friction de réseau et augmente sa résistance [3] (typiquement 33MPa de résistance mécanique supplémentaire pour 1% de manganèse).

Cependant ce type de produit industriel n'est souvent pas adapté à des études fondamentales visant à comprendre les mécanismes d'évolution microstructurale. Il est en effet difficile d'obtenir des produits chimiquement homogènes car le manganèse a une forte tendance à ségréger lors de l'élaboration de l'acier (lors de la solidification). Ces ségrégations à différentes échelles (micro ou macro) modifient localement les conditions de transformation de phase et impacte donc les évolutions des microstructures. Cela peut conduire à des

microstructures en « bandes » d'un point de vue topologique, classiques des aciers Dual-Phase ferrite/martensite [4], mais qui peuvent aussi apparaître dans les nuances bainitiques [5].

Les hétérogénéités chimiques du manganèse peuvent, certes, être réduites par un traitement d'homogénéisation dans le domaine austénitique à haute température (T≥1250°C). Cependant, la diffusion du Mn dans l'austénite est très lente. Les temps de traitement sont par conséquent très longs (≥12h) et il reste difficile d'obtenir des états métallurgiques parfaitement homogènes. Ces traitements nécessitent en outre de protéger parfaitement les surfaces d'une possible décarburation.

Par ailleurs, la présence d'éléments de microalliage (comme le vanadium, le titane, le niobium ou le bore) dans les aciers industriels impacte aussi significativement les mécanismes de transformation de phase mis en jeu. Il est donc difficile, sur une nuance industrielle, d'isoler les différentes contributions respectives des mécanismes.

Aussi, pour étudier la dénaturation morphologique et cristallographique des microstructures bainitiques lors de maintiens isothermes prolongés, nous avons choisi de travailler dans un premier temps à partir de nuances modèles de composition chimique simplifiée de type FeNiC. Le manganèse a ainsi été remplacé par le nickel qui est également un élément gammagène mais qui a l'avantage de moins partitionner lors de la solidification, réduisant ainsi les ségrégations.

Les figures II.1 et II.2 montrent respectivement des diagrammes TTT de décomposition de l'austénite pour différents aciers (début de transformation) et l'effet de l'ajout d'éléments substitutionnels sur l'augmentation de la dureté de la ferrite. Ces deux figures permettent de comparer les effets respectifs du nickel et du manganèse sur les cinétiques de transformation de phase et sur les propriétés de la ferrite. Les diagrammes TTT montrent que les aciers alliés au nickel présentent des temps d'incubation des transformations purement diffusives réduit par rapport aux aciers alliés au manganèse dans les mêmes proportions (1 s pour l'acier 3 contre 6 s pour l'acier 5 et 3 s pour l'acier 4 contre 12 s pour l'acier 6 vers 650°C). On retrouve aussi cet effet relatif pour la transformation bainitique. L'allure des nez ferritiques et bainitiques reste par contre inchangée. Le nickel est donc moins trempant que le manganèse (à teneur équivalente). Il sera donc nécessaire de considérer des alliages à teneurs élevées en nickel pour avoir une trempabilité équivalente aux nuances au manganèse conventionnelles (typiquement 2-3%Mn). Pour avoir un effet similaire, on estime que 5%Ni sont nécessaires. Ces hautes teneurs ne sont pas problématiques dans le cas du nickel car la figure II.2 montre que le nickel est moins durcissant que le manganèse (typiquement deux fois moins) et car le nickel est considéré comme élément non/faiblement carburigène (comme le manganèse d'ailleurs). Ainsi, le nickel et le manganèse entrent dans la composition de la cémentite mais ne forment pas des carbures spéciaux [6].

Après l'étude des nuances modèles de type FeNiC, nous nous sommes intéressés à une dernière nuance visant à substituer progressivement le nickel par son équivalent en manganèse. Cette dernière nuance se rapproche des compositions des aciers bainitiques industriels. Elle nous permettra de vérifier si les mécanismes observés pour des nuances modèles sont également observés dans des nuances industrielles et leurs cinétiques le cas échéant.

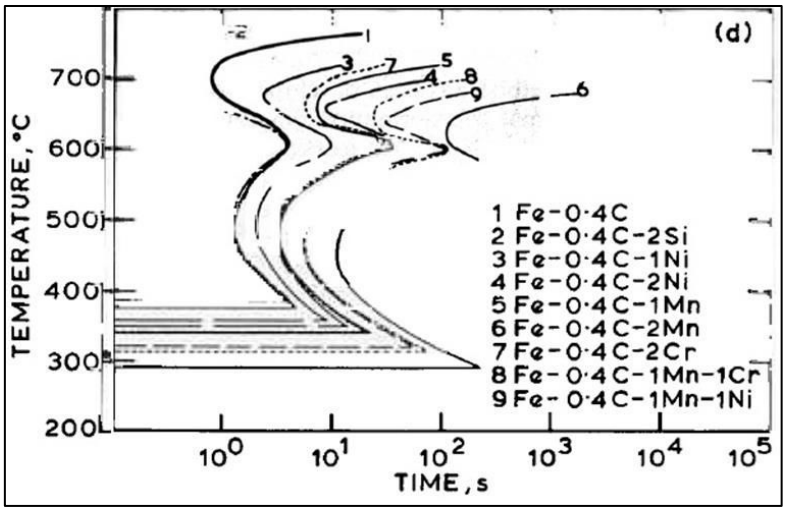


Fig.II.1 : Diagrammes TTT expérimentaux des temps d'incubation des transformations ferritiques et bainitiques pour 9 aciers modèles à 0.4%C. Figure tirée de [7].

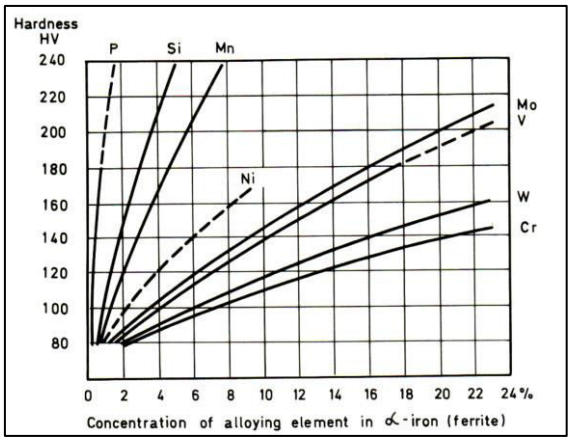


Fig.II.2: Effet de l'addition d'éléments d'alliages substitutionnels sur la dureté de la ferrite [8].

I.2. Nuances modèles sélectionnées et leur élaboration

En prenant en compte les considérations de la section I.1, nous avons retenu trois nuances modèles :

- La nuance de référence **N1** de composition Fe-0.33%C-5%Ni
- La nuance **N2** de composition Fe-0.13%C-5%Ni
- La nuance **N3** de composition Fe-0.33%C-1%Mn-2.5%Ni

N1 et N2 se distinguent par leur taux de carbone et présenteront donc des cinétiques de transformation différentes. Leur comparaison permettra de discuter l'effet de la teneur en carbone sur l'évolution des microstructures sous condition de traitement thermique isotherme. La nuance N3 contient du manganèse pour se rapprocher des nuances industrielles. Par rapport à la nuance N1, nous avons substitué 2.5% du nickel par 1% de manganèse afin de garder une même température Ms pour N1 et N3. On estime aussi que ces deux nuances auront la même trempabilité (nez de transformations diffusives).

Ces trois aciers ont été élaborés par ArcelorMittal Maizières Research sous forme de tôles minces. Des lingots des trois alliages ont d'abord été produits dans des fours VIM (Vacuum Induction Melting). Après découpe et une courte procédure d'homogénéisation, des lopins

sont réchauffés à 1250°C, laminés à chaud à une température supérieure à 900°C et enfin refroidis à l'air. Les tôles à chaud obtenues ensuite sont laminées à froid après élimination des surfaces décarburées jusqu'à des épaisseurs de 1 mm.

Pour les 3 nuances, nous avons calculé les températures caractéristiques de transformation de phases (Ac1, Ac3, Ar3, Ms, Bs) et reporté ces valeurs dans le tableau II.1. Les températures de début et de fin d'austénitisation au chauffage Ac1 et Ac3, ont été calculées à partir des formules proposées par Eldis (Équations II.1 et II.2), valables pour des aciers à moins de 0.6%C [9]. Au refroidissement, le début de la transformation ferritique Ar3 a été estimé à partir de la formule d'Ouchi (Equation II.3) [10]. Les températures de début de transformation martensitique Ms et bainitique Bs ont été calculées à partir des formules proposées par Steven et Haynes (Equations II.4 et II.5). Ces formules sont préconisées pour des aciers contenant : [0.1-0.55]% C, 0.2-1.7% Mn, [0.0-5.0]% Ni, [0.0-1.0]% Mo et [0.0-3.5]% Cr [11]. Récemment, de nouvelles formules ont été établies et sont applicables à des aciers à plus large intervalle de taux de carbone allant de 0.15 à 1.8%C (Equations II.6 et II.7) [12]. Nous avons reporté aussi ces valeurs dans le tableau à des fins de comparaison, car ces formules sont toutes empiriques et donc dépendent fortement de la base de calibration.

Comme discuté qualitativement dans la section précédente, on notera que le manganèse a un effet à peu près double du nickel dans les équations décrivant les points Ms et Bs. En conséquence, les points de transformation attendues des nuances N1 et N3 sont très proches (cases grisées). On s'attend aussi à ce que la nuance N2 présente un Ms 80°C plus élevé et un Bs 50°C plus élevé que la nuance N1. Les valeurs de Ac3 montrent que les nuances pourront être austénitisées facilement (au-dessus de 710°C). Enfin, il apparait que les points Ar3 attendus sont très faibles (sous Bs pour les nuances FeNiC), ce qui est très surprenant. C'est pourquoi nous pensons que la loi empirique pour ces nuances à haut nickel n'est pas bien calibrée.

La température Ms est étroitement dépendante de la taille de grains austénitiques, et donc de la température d'austénitisation [13]. C'est un effet qui n'est pas pris en compte dans les équations II.5 et II.7, ajustées sur des nuances à gros grains austénitiques en général. Par conséquent, pour éviter de mauvaises surprises, nous avons choisi de les déterminer expérimentalement par dilatométrie. Ce sont ces valeurs expérimentales, données au tableau II.3 en section II, qui serviront de référence pour définir nos températures de traitements thermiques.

$$Ac_1\ (°C) = 712-17{,}8\ \%Mn-19{,}1\ \%Ni+20{,}1\ \%Si+11{,}9\ \%Cr+ 3{,}86\ \%Mo \quad (II.1)$$

$$Ac_3\ (°C) = 871-254{,}4\ \%\sqrt{C}-14{,}2\ \%Ni+51{,}7\ \%Si \quad (II.2)$$

$$Ar_3\ (°C) = 910-310\ \%C-80\ \%Mn-55\ \%Ni-15\ \%Cr-80\ \%Mo \quad (II.3)$$

$$Ms\ (°C) = 531-391{,}2\ \%C-43{,}3\ \%Mn-21{,}8\ \%Ni-16{,}2\ \%Cr \quad (II.4)$$

$$Bs\ (°C) =830-270\ \%C-90\ \%Mn-37\ \%Ni-70\ \%Cr-83\ \%Mo \quad (II.5)$$

$$Ms\ (°C) = 565 - 600\ (1 - \exp\ (-0.96\%C))- 31\%Mn- 18\%Ni - 10\%Cr - 12\%Mo - 13\%Si \quad (II.6)$$

$$Bs\ (°C)= 839 - 270\ (1 - \exp\ (-1.33\%C)) - 86\%Mn - 33\%Ni - 67\%Cr - 75\%Mo - 23\%Si \quad (II.7)$$

Température critique	Equation	Valeur (en °C) pour les 3 aciers de l'étude		
		N1	N2	N3
Ac1	II.1	617	617	646
Ac3	II.2	654	708	689
Ar3	II.3	533	595	590
Ms	II.4	293	371	304
Bs	II.5	556	610	558
Ms	II.6	312	405	326
Bs	II.7	578	631	575

Tab.II.1 : Températures caractéristiques de transformation de phase calculées pour les trois nuances de l'étude à partir d'équations empiriques.

II. Traitements thermiques

La majorité des traitements thermiques de cette étude a été réalisée par dilatométrie afin de mesurer les cinétiques de transformation de phase. Cependant, ce type de traitement impose une limitation sur la taille et la forme des échantillons. Celles-ci ne permettent pas la réalisation d'essais mécaniques par la suite. C'est pourquoi des traitements additionnels sur plaques, calqués sur les essais de dilatométrie ont été réalisés en bain de sels. Ils seront décrits dans la dernière section de cette partie.

II.1. Dilatomètres utilisés et exploitation du signal dilatométrique

Deux dilatomètres ont été utilisés dans cette étude :

- Un dilatomètre vertical appelé DCR (« Dilatomètre à Cycles Rapides »), développé à l'IJL. La figure II.3 montre un schéma de ce dispositif de laboratoire non commercial. Les traitements sur les nuances N1 et N3 ont été effectués sur ce dilatomètre. Il permet de réaliser des cycles contrôlés à l'aide de son système de chauffage par rayonnement (jusqu'à 1200°C) placé sous vide secondaire (5.10^{-4} mbar) et grâce à son système de refroidissement à vanne de débit variable. Les jets de gaz (Hélium) assurent un refroidissement pouvant atteindre une vitesse maximale d'environ 70°C/s. Nos échantillons ont été découpés à partir des plaques laminées à froid amincies par polissage et sont de forme parallélépipédique de dimensions 30 mm x 4 mm x 0,5 mm. L'épaisseur réduite permet d'améliorer l'homogénéité thermique et d'augmenter les vitesses de refroidissement possibles. Ils sont placés entre les tiges en silice (coefficient de dilatation faible : 5.10^{-7} K^{-1}). Les longueurs variant par dilatation thermique et par transformations de phase sont transmises à un capteur LVDT (Linear Variable Differential Transformer) par ces tiges. Le suivi de la température est assuré par un thermocouple de type K soudé au milieu de l'échantillon. Un système de régulation de type PID (Proportionnel, Intégral, Dérivée) permet d'asservir la température de l'échantillon à la valeur de température consigne.

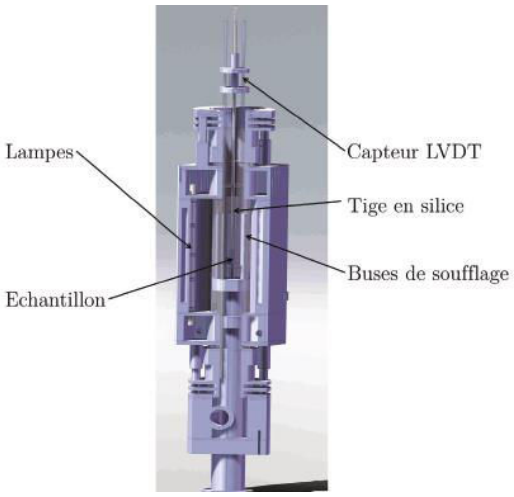


Fig.II.3 : Coupe schématique transverse du DCR (Dilatomètre à Cycles Rapides) de l'IJL [14]

- Des dilatomètres commerciaux BAHR Thermoanalyse GmbH modèle DIL805 à ArcelorMittal Maizières Research et à DESY (ligne de lumière de synchrotron). La figure .II.4 montre une photographie de la chambre de chauffage de ce dispositif. Les traitements thermiques sur la nuance N2 ont été réalisés avec ce dilatomètre à ArcelorMittal, car il présente une meilleure vitesse de refroidissement. Le même dispositif était disponible sur la ligne de lumière synchrotron pour nos essais de DRXHE in situ. Ce dilatomètre comporte un système de chauffage par induction dans une enceinte opérant sous vide secondaire (10^{-5} mbar). Le refroidissement est assuré par un système de soufflage de gaz (Hélium) qui permet t'atteindre des vitesses de refroidissement plus rapides (>100°C/s) que celles obtenues avec le DCR. Pour contrôler la température, un thermocouple de type K est soudé à mi-hauteur de l'échantillon parallélépipédique de dimensions 10 mm x 4mm x 1mm. De même qu'en DCR, la longueur de l'échantillon, placé entre des tiges de silice, est mesurée à chaque instant par un dispositif LVDT.



Fig.II.4 : Chambre de chauffage du Dilatomètre BAHR Thermoanalyse GmbH DIL805 [15]

Pour chaque nuance, les traitements thermiques en dilatométrie ont permis de fabriquer des échantillons à microstructure maîtrisée. Par ailleurs, le signal dilatométrique a également été exploité pour déterminer les températures de transformation martensitique et pour suivre les cinétiques de transformation de phase en condition isotherme.

- Détermination expérimentale du point Ms

La valeur de Ms a été déterminée de manière classique à partir de la courbe dilatométrique lors d'un traitement de trempe à vitesse de refroidissement maximale. Elle correspond à la température à laquelle on commence à s'éloigner de la contraction linéaire de l'austénite au refroidissement. A titre d'exemple, la figure II.5 montre la courbe dilatation – température lors de l'austénitisation et la trempe de la nuance N1. Le point rouge indique la rupture de pente entre contraction linéaire de l'austénite et la dilatation volumique à cause de la transformation martensitique. Dans ce cas, on trouve une valeur de 325°C. Cette méthodologie est très conservative et donc conduit souvent à des valeurs mesurées supérieures à celles données par les modèles empiriques (325°C à comparer à 293°C ou 312°C). Les Ms mesurées pour les trois nuances sont respectivement 325°C, 360°C et 325°C.

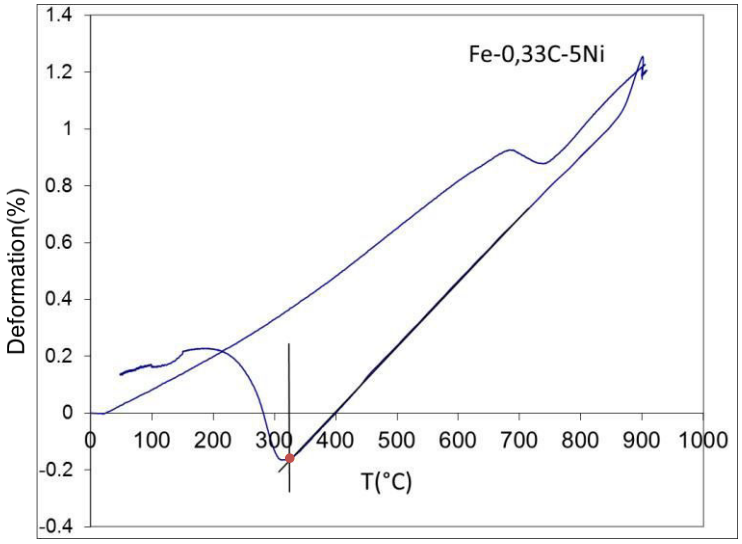


Fig.II.5 : Courbe dilatométrique déformation (%)-température (°C) obtenue pour la nuance N1 sur DCR pour un traitement d'austénitisation (900°C/5min) suivi d'une trempe. Le point rouge correspond au Ms selon les critères discutés dans le texte.

- Cinétiques de transformation en condition isotherme

Lors des traitements permettant une transformation bainitique en condition isotherme, nous avons aussi pu suivre la dilatation des échantillons en fonction du temps. Les courbes dilatation-temps permettent de visualiser la cinétique de cette transformation et ont toujours l'aspect de courbes sigmoïdes saturantes. Il est impossible de savoir à partir de ce signal si la transformation est totale ou incomplète sans observations microstructurales car la valeur de dilatation finale (relative ou absolue) dépend de l'échantillon. Les transformations incomplètes sont généralement observées en l'absence de précipitation de carbures, ce qui n'est pas notre cas. Nous avons donc considéré que nos transformations bainitiques sont finies quand la courbe de dilatation stabilise. On peut donc définir un temps de fin de transformation sur cette base, même si la démarche reste empirique. La figure II.6 montre un exemple de détermination de ce temps de transformation dans le cas de la nuance N1. Il s'agit d'un traitement d'austénitisation à 900°C/5min suivi d'un refroidissement puis d'un maintien isotherme à 410°C. Elle représente contrairement à la figure précédente la dilatation mesurée en fonction du temps. La transformation bainitique débute dès la fin de refroidissement (t = 395 s, à la fin de la contraction linéaire de l'austénite). Lors du maintien isotherme, l'échantillon se dilate à cause de la transformation bainitique. La cinétique présente une allure

saturante. On estime alors que la transformation est finie à t = 475 s quand le signal sature et donc que le temps de transformation bainitique est de 80 s à 410°C pour la nuance N1. Nous avons défini les temps de fin de transformation par une lecture graphique quand le signal semble se stabiliser (des techniques plus mathématiques comme l'analyse des dérivées ne permettaient pas d'obtenir une meilleure détection de ces temps, compte tenu des incertitudes sur le signal dilatomètrique).

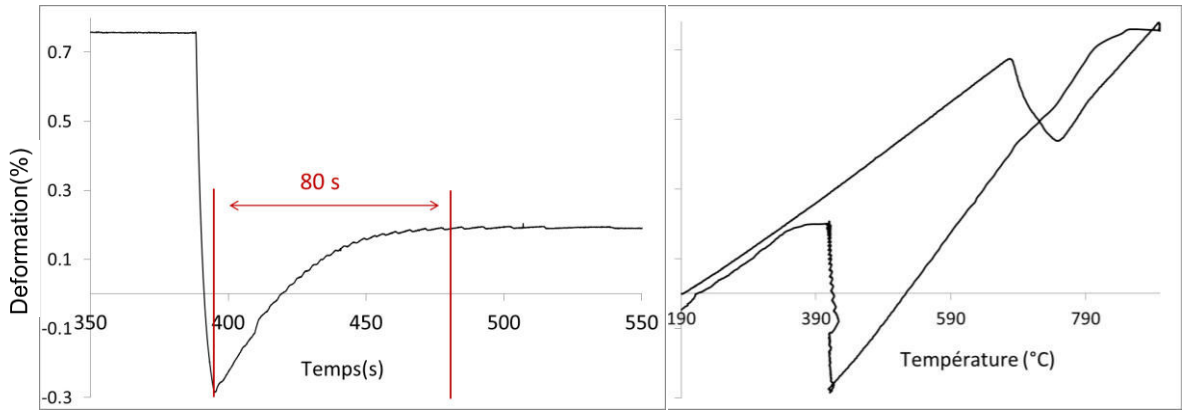


Fig.II.6 : Courbes dilatométriques (a) déformation (%) – temps (s) et (b) déformation (%) – température (°C) obtenues pour la nuance N1 sur DCR pour un traitement d'austénitisation (900°C) suivi d'un refroidissement et d'un maintien isotherme à 410°C. Lors du maintien isotherme, la dilatation de l'échantillon sature après 80 s, ce que l'on considère être le temps de transformation bainitique dans ces conditions.

II.2. Les cycles thermiques en dilatomètre

II.2.1 Les différents traitements 'types' réalisés

L'ensemble des cycles thermiques réalisés est présenté sur la figure II.7. Chaque cycle thermique commence par un traitement d'austénitisation de 5 min pour obtenir une dissolution complète des carbures et une taille moyenne des grains austénitiques d'environ 20 µm. La température d'austénitisation retenue varie en fonction de la teneur en carbone de la nuance considérée et des dispositifs expérimentaux. Elle a été fixée à 900°C pour les nuances N1 et N3 dont le taux de C est le plus élevé, et à 820°C pour la nuance N2.

L'étape d'austénitisation est suivie par différents types de traitement en fonction de l'état métallurgique souhaité. Ils visent à produire des microstructures maîtrisées de type martensite, bainite Haute Température, bainite Basse Température et bainite Mixte, d'une part juste après transformation complète et d'autre part suite à un maintien isotherme prolongé (revenu pour la martensite et « sur-transformation » pour la bainite).

Nous avons choisi de distinguer ces deux termes car le revenu suppose un passage à température ambiante alors que les traitements de sur-transformation sont réalisés sans interruption, dans la continuité des transformations bainitiques isothermes.

Le tableau II.2 explicite les acronymes qui seront utilisés dans toute la suite du manuscrit.

Microstructures initiales	BHT	Bainite Haute Température
	BBT	Bainite Basse Température
	M	Martensite
	BMIXTE	Bainite Haute Température + Bainite Basse Température
	B-M	Bainite Haute Température + Martensite
Traitements thermiques ultérieurs	ST	Sur-Transformation/ Sur-Transformé
	R	Revenu

Tab.II.2 : Acronymes désignant les produits de transformation et leurs conditions de traitement.

On distingue ainsi pour chaque nuance, les traitements suivants après austénitisation :

- **(M) :** Une trempe à vitesse de refroidissement maximale (en vue d'obtenir une structure martensitique).
- **(M-R) :** Une trempe (M) suivie d'un revenu à la température Ms+15°C
- **(B) :** Des paliers bainitiques s'arrêtant juste en fin de transformation, aux températures $T_{BHT} \geq$ Ms+85°C (mais toujours largement inférieures à Bs) pour former de la BHT et T_{BBT}= Ms+15°C pour former de la BBT. Avant d'atteindre ces paliers, l'échantillon est refroidi à une vitesse suffisamment rapide (70°C/s pour N1 et N3 et 90°C/s pour N2) pour ne pas former de la ferrite polygonale.
- **(B-ST) :** Des paliers bainitiques à T_{BHT} et T_{BBT} de **« Sur-Transformation »**. Ils correspondent à un maintien prolongé (jusqu'à 5h) après transformation bainitique complète (sans interruption et retour à température ambiante, contrairement à un revenu)
- **(BMIXTE) :** Des doubles paliers bainitiques (transformation étagée à T_{BHT} puis T_{BBT}) s'arrêtant juste en fin de transformation.
- **(BMIXTE-ST) :** Des doubles paliers bainitiques de **« Sur-Transformation »** pour produire une microstructure mixte (BHT/BBT) puis la maintenir en isotherme après transformation bainitique complète (jusqu'à 5h).
- **(B-M) :** Des paliers bainitiques à T_{BHT} s'arrêtant avant la fin de transformation et suivis d'une trempe pour produire une microstructure mixte BHT+M**.**
- **(B-M-R) :** Des paliers bainitiques à T_{BHT} s'arrêtant avant la fin de transformation et suivis d'une trempe pour produire une microstructure mixte BHT+M, complétés par un revenu à Ms+15°C.

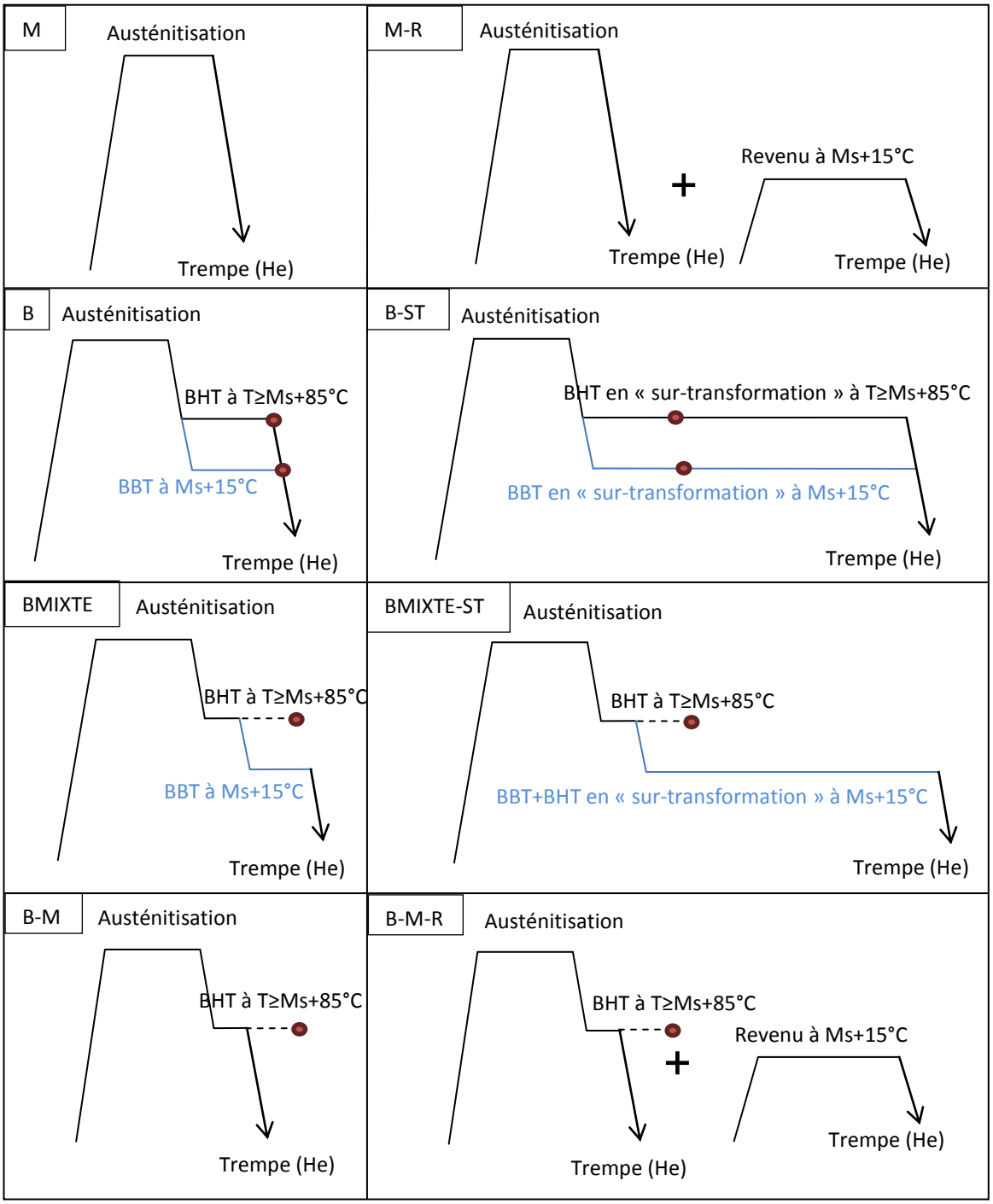


Fig.II.7 : Traitements thermiques réalisés sur dilatomètre sur les nuances de l'étude.

II.2.2 Récapitulatif de l'ensemble de la campagne de traitement thermique

Le tableau II.3 détaille tous les traitements thermiques effectués sur les trois nuances N1, N2 et N3 en précisant les cinétiques de transformation aux T_{BBT} =Ms+15° et T_{BHT} >Ms+85°C. Les duretés Vickers de certains échantillons ont été mesurées à des fins de comparaison.

(a)

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)[1]
BBT	340°C / 1700s	347
M	Trempe	520
BHT	410°C / 80s	302
BMIXTE	410°C / 25s + 340°C / 570s	315
B-M	410°C / 25s + trempe	400
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BBT-ST-1	340°C / 5h	326
BBT-ST-2	340°C / 1700s + 360°C / 30min	335
BBT-ST-3	340°C / 1700s + 360°C / 5h	315
BBT-ST-4	340°C / 1700s + 380°C / 30min	
M-R	Trempe + 340°C / 5h	310
BHT-ST-1	410°C / 200s	256
BHT-ST-2	410°C / 950s	242
BHT-ST-3	410°C / 80s + 340°C / 870s	264
BMIXTE-ST-1	410°C / 25s + 340°C / 30 min	305
BMIXTE-ST-2	410°C / 25s + 340°C / 5h	273
B-M-R	410°C / 25s + trempe + 340°C / 5h	352

(b)

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BBT	380°C / 50s	321
M	Trempe	499
BHT	470°C / 20s	209
BMIXTE	470°C / 10s + 380°C / 30s	
B-M	470°C / 10s + trempe	
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BBT-ST-1	380°C / 30min	310
BBT-ST-2	380°C / 5h	291
M-R	Trempe + 380°C / 5h	
BHT-ST-1	470°C / 300s	
BMIXTE-ST-1	470°C / 10s + 380°C / 30 min	
BMIXTE-ST-2	470°C / 10s + 380°C / 5h	
B-M-R	470°C / 10s + trempe + 380°C / 5h	

[1] Les mesures de dureté ont été effectuées sur un microduromètre Zwick-Roell/Indentec, à 1/4 de l'épaisseur de l'échantillon pour éviter les hétérogénéités et les défauts au centre et les décarburations aux bords. La valeur indiquée correspond à la moyenne d'une filiation de dix mesures.

(c)

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BBT	340°C / 110s	
M	Trempe	
BHT	450°C / 40s	
BMIXTE	450°C / 10s + 340°C / 180 min	
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	
BMIXTE-ST-1	450°C / 10s + 340°C / 5h	

Tab.II.3 : Traitements thermiques en dilatomètre pour la nuance N1(a), N2(b) et N3(c) respectivement.

II.3. Traitements thermiques additionnels en bain de sels

Des traitements thermiques additionnels en bain de sels ont été appliqués sur des tôles de la nuance N2 par ArcelorMittal. Notre objectif était de pouvoir prélever des éprouvettes de traction et réaliser des essais mécaniques.

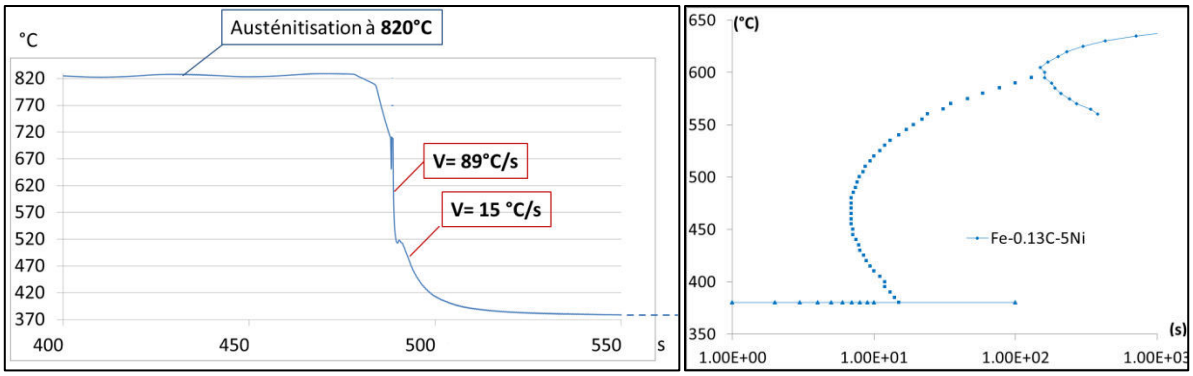
Les traitements en bain de sels permettent une bonne répartition de la chaleur et limitent les gradients de microstructure au sein des tôles. Cependant, il est impossible de contrôler la vitesse de refroidissement entre austénitisation et traitement thermique isotherme (transformation bainitique et sur-transformation).

II.3.1 Condition de traitement

Après austénitisation à 820°C dans un four pendant 5 min, les tôles ont été plongée dans le bain de sels porté à la température du palier bainitique (T_{BBT}= 380°C = Ms+15°C). Grâce à un thermocouple soudé au milieu de la tôle, nous avons pu suivre la vitesse de refroidissement. Une fois le palier atteint, nous arrêtons le maintien soit : (1) juste après la fin de transformation (temps estimé au préalable au moyen des traitements en dilatomètre), soit (2) après un maintien pour obtenir de la bainite « sur-transformée ».

La figure II.8.a montre l'enregistrement de la température au cours du temps mesuré lors des traitements thermiques en bain de sels. Les vitesses de refroidissement moyennes obtenues en dessous de 820°C et de 520°C ont été indiquées. La figure II.8.b présente le diagramme TTT obtenu par un calcul MUCG83[2] pour la nuance N2 [7]. Jusqu'à 520°C, la vitesse de refroidissement est de 89°C/s, donc comparable aux essais réalisés en dilatomètre. Par conséquent, le domaine de formation de la ferrite a pu être évité. Par contre, la vitesse est ensuite plus lente et il y a formation de bainite à haute température avant d'atteindre le palier isotherme pour la formation de bainite à basse température. Par conséquent, les traitements thermiques conduits en bain de sels produisent des microstructures mixtes, très similaires sur le principe à celle obtenue en dilatométrie par des traitements étagés. Nous les avons donc nommés de la même façon pour éviter de compliquer encore la nomenclature. Le tableau II.4 reprend les traitements réalisés et les microstructures obtenues en bain de sels à partir de la nuance N2.

[2] Le modèle utilisé décrit les cinétiques de germination à partir d'un calcul thermo-chimique et d'une loi thermo-cinétique empirique. Le code a été développé par l'équipe de H. Bhadeshia à Cambridge et est disponible gratuitement (http://www.phase-trans.msm.cam.ac.uk/map/map.html)



(a) (b)

Fig.II.8 : (a) Enregistrement de la température lors d'un traitement en bain de sels. Les vitesses de refroidissement moyennes obtenues depuis le domaine austénitique jusqu'au palier bainitique à 380°C; (b) diagramme TTT de début de transformation (modèle de germination) de la nuance N2 calculé par le logiciel MUCG83 [7].

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BMIXTE	Refroidissement Continu + 380°C / 50s	265
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	
BMIXTE-ST-1	Refroidissement Continu + 380°C / 10min	248
BMIXTE-ST-2	Refroidissement Continu + 380°C / 30min	221
BMIXTE-ST-3	Refroidissement Continu + 380°C / 5h	218

Tab.II.4 : Traitements thermiques en bain de sels pour la nuance N2.

II.3.2 Essais mécaniques de traction

Le comportement mécanique des microstructures obtenues en bain de sels a été caractérisé par des essais de traction uniaxiale, réalisés à ArcelorMittal Maizières Research. Les dimensions des éprouvettes sont reportées sur la figure II.9. Elles ont été découpées dans la direction de laminage des tôles.

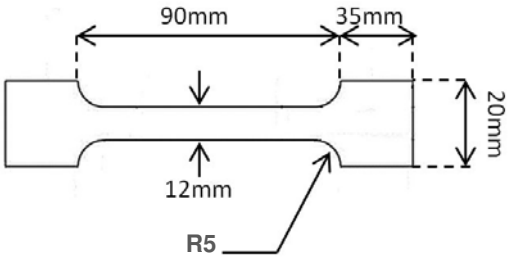


Fig.II.9 : Schéma des éprouvettes de traction.

Les essais ont été réalisés sur une machine Zwick-Roell permettant d'exercer un effort maximum de 100kN. La déformation a été mesurée à l'aide d'un extensomètre vidéo à haute résolution placé en face de la zone utile. Une vitesse de déformation lente de 8.6 10^{-4} s^{-1} a été imposée, ce qui correspond à des conditions quasi-statiques et conventionnelles.

III. Caractérisation microstructurale par microscopie électronique

Deux techniques principales ont été mises en œuvre pour caractériser et comparer les différentes microstructures bainitiques et martensitiques obtenues. Il s'agit de la microscopie électronique à balayage (MEB) et de la microscopie électronique à transmission (MET). Les images MEB nous ont permis d'étudier la morphologie, la taille et l'arrangement des lattes ferritiques et des carbures au sein de cette matrice. Le MET a permis d'approfondir la caractérisation des carbures et ce, en combinant différents types d'analyse : l'imagerie, la diffraction et l'analyse EDS.

III.1. Le MEB pour l'étude morphologique des lattes ferritiques et des carbures

Les observations au MEB ont été réalisées sur la section normale à la direction de laminage (DN,DT) à 1/4 d'épaisseur de la tôle. Avant observation, les surfaces des échantillons ont été polies à l'aide d'une polisseuse automatique Struers. Le protocole consistait en un polissage mécanique, jusqu'au papier abrasif de granulométrie 4000, suivi d'un polissage avec des disques diamantés de 3 µm et 1 µm et d'un polissage de finition à l'OPS (solution de silice colloïdale). Enfin pour révéler les joints de lattes et les carbures, la surface a subi une attaque chimique au réactif Picral (composé de 4g d'acide picrique dans 100 mL d'éthanol). Dans les conditions normales de température et d'humidité, l'attaque se fait en 10 s. Dans le cas contraire, ou s'il y a oxydation de la surface, il faut rester plus de temps (jusqu'à parfois 5 min). Il est possible d'accélérer la réaction par l'ajout d'attaques intermédiaires instantanées au Nital.

Les microstructures ont été imagées avec deux types de détecteurs:

- Le détecteur BSE (Back-Scattered Electron): Ces images ont été acquises sur des d'échantillons polis jusqu'à l'OPS. A fort grandissement, elles permettent efficacement de distinguer les lattes, même celles très faiblement désorientées. On rappelle que les électrons rétrodiffusés résultent de l'interaction quasi-élastique du faisceau d'électrons primaires avec les noyaux des atomes constitutifs de l'échantillon. Leur rendement est d'autant plus important que le numéro atomique Z des atomes constituant la cible est élevé, permettant ainsi de générer des images de contraste de composition chimique. Les images en électrons rétrodiffusés révèlent également un contraste d'orientation. En effet, l'intensité d'émission des électrons rétrodiffusés dépend fortement de l'orientation cristallographique du grain par rapport au faisceau incident. C'est ce contraste cristallin qui permet de révéler les lattes très faiblement désorientées.

- Le détecteur SE (Secondary Electron) : Ces images ont été acquises sur des échantillons attaqués au Picral. L'attaque permet de révéler à la fois les joints de lattes et les carbures. Les électrons secondaires ont des énergies très faibles (quelques dizaine d'eV) et proviennent par conséquent des couches superficielles (quelques nanomètres) de l'échantillon observé. Leur rendement dépend fortement du relief de la surface de l'échantillon et c'est la raison pour laquelle ils sont utilisés pour produire des images topographiques de l'échantillon. Les images en électrons secondaires ont été acquises soit avec un détecteur conventionnel de type Everhart-Thornley, soit avec un détecteur « In Lens ». Les carbures apparaissent toujours clairs sur une matrice sombre comme le montre la figure II.10. Les images ont été acquises sur un MEB Zeiss Supra 40 au LEM3.

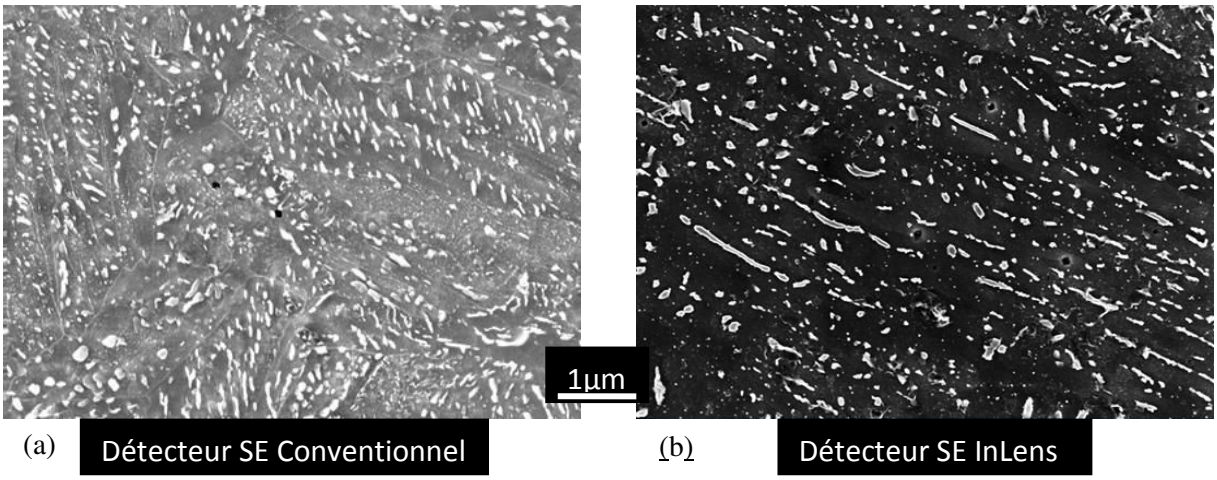


Fig.II.10 : Micrographies types en électrons secondaires SE (a) avec le détecteur conventionnel et (b) avec le détecteur InLens.

III.2. Le MET pour l'investigation poussée des carbures

Une investigation approfondie des carbures a été menée en microscopie à transmission, sur des échantillons de bain de sels de la nuance N2[3] (Fe-0.13%C-5%Ni) (Tab.II.4). Les microscopes utilisés sont un MET conventionnel PHILIPS CM200, et un MET ARM 200F (Cold Field Emission Gun) de résolution spatiale de 0.1 nm (Fig.II.11), opérant tous les deux avec une tension d'accélération de 200 kV. Les observations et mesures au microscope ARM ont été réalisées avec Dr. Jaafar Ghanbaja à l'IJL.

III.2.1 Techniques de préparation des lames minces

Pour l'observation en mode imagerie et en mode diffraction, des lames minces conventionnelles ont été utilisées. Leur préparation a d'abord nécessité un amincissement mécanique jusqu'à une épaisseur d'environ 50 µm. Ensuite il s'agissait d'appliquer un polissage électrolytique à -20°C dans une solution à 95% d'éthanol et 5% d'acide perchlorique, et ceci sous une tension de 30V.

Pour l'analyse chimique des carbures, nous avons eu recours à des répliques extractives et ce, afin d'éviter la contribution de la matrice ferritique dans le signal EDS émis par les particules de carbure. Les répliques ont été réalisées à ArcelorMittal Maizières Research avec l'expertise de Patrick Barges. Elles ont été extraites par méthode directe avec dépôt de carbone. Le dépôt du film de carbone sur la surface attaquée de l'échantillon a été réalisé dans un évaporateur Edwards/Coating System E306A. Le film de carbone, avec les carbures, est ensuite arraché par dissolution chimique de la matrice. Enfin, la préparation est déposée sur une grille de microscopie en cuivre.

II.2.2. Le mode Imagerie

L'imagerie en champ clair a servi à l'analyse de la morphologie des carbures avec la résolution de la transmission pour déterminer s'ils re-précipitent sous forme de films continus lors de l'étape de « sur-transformation ».

Au MET, une image conventionnelle est formée soit à partir du faisceau d'électrons transmis (champ clair / Bright Field), ou à partir de l'un des faisceaux diffractés (champ sombre / Dark Field).

[3] Outre l'investigation des carbures, le MET a été utilisé pour confirmer les ordres de grandeur des largeurs de lattes de bainite observées au MEB, sur une lame mince prélevée dans l'échantillon BBT de la nuance N1.

Les images dans notre étude ont plutôt été acquises en champ clair, car notre but n'était pas l'étude particulière des défauts cristallins mais plutôt les carbures qui étaient facilement repérables dans la matrice ferritique et ne nécessitaient pas le travail en champ sombre pour les mettre en relief.

Dans les images en champ clair, le contraste a deux origines :

- le contraste d'absorption : provient de l'absorption des électrons incidents lorsqu'ils traversent l'échantillon. L'absorption est d'autant plus intense, et par conséquent l'image est d'autant plus sombre, que l'échantillon est épais ou constitué d'éléments lourds.
- le contraste de diffraction : dépend de l'orientation du cristal ou des défauts locaux présents dans la structure selon le faisceau incident. Lorsque l'élément diffractant est dans une position de Bragg, l'intensité du faisceau transmis est réduite par la formation de faisceaux diffractés donnant une image plus sombre.

Pour notre cas, l'effet du contraste de diffraction est le plus prononcé : les carbures apparaissent tout le temps sombres dans la matrice ferritique plus claire, or ils ont un nombre atomique moyen plus faible.



Fig.II.11 : Microscope électronique à transmission Jeol ARM200F cold FEG de l'IJL.

III.2.3 En mode Diffraction

III.2.3.1 Acquisition de clichés

Le MET a été utilisé en mode de diffraction pour déterminer la structure cristalline des carbures. Lorsque la particule (ou film) de carbure analysée est en condition de Bragg, le faisceau d'électrons est diffracté par les plans atomiques. Les ondes diffractées interagissent de manière constructive et sont focalisées au niveau du plan focal arrière de la lentille pour former le motif de diffraction.

Dans le cas d'un monocristal, le cliché de diffraction est formé d'un réseau régulier de réflexions (taches claires) organisé d'une manière prévisible sur la base de la structure cristalline de l'échantillon. C'est le cas pour nous, des particules de carbure individuelles. En présence d'un grand nombre de carbures avec des morphologies et des tailles différentes, le cliché de diffraction est constitué d'un ensemble d'anneaux concentriques (Fig.II.12). Pour

isoler une population des carbures (par exemple ceux de petite taille), on peut limiter la zone qui participe à la diffraction par l'introduction d'un diaphragme de sélection d'aire (SAED Selected Area Electron Diffraction).

La nature cristalline des carbures est ensuite déterminée à travers l'indexation des clichés de diffraction obtenus.

(a)  (b) 

Fig.II.12 : (a) Cliché de diffraction d'un monocristal, (b) Diagramme d'anneaux de diffraction concentriques d'un polycristal (exemples fournis par J. Ghanbaja).

III.2.3.2 Indexation des clichés

Les clichés et anneaux de diffraction ont été analysés à l'aide du logiciel Digital Micrograph qui permet de les indexer en suivant les étapes suivantes :

1- Mesurer les distances d_i
2- Calculer les $(d_{hkl})_i$ à partir de la relation : $(d_{hkl})_i = 2L\lambda/d_i$
3- Déterminer les réflexions $(hkl)_i$ correspondant aux différents $(d_{hkl})_i$

Où L est la distance entre l'échantillon et le plan de diffraction, appelée "longueur de caméra", d_i est obtenue en mesurant la distance entre deux spots symétriques ou le diamètre d'un anneau. La figure II.13 montre un cliché de points et trois distances d_i correspondantes à trois plans $(h_ik_il_i)$.

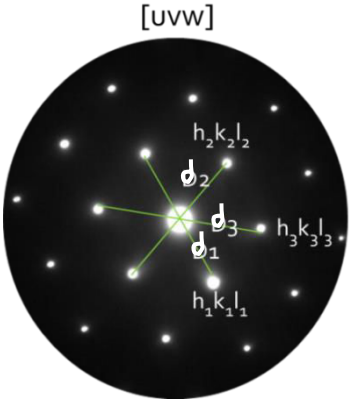


Fig.II.13 : Indexation d'un cliché de diffraction.

Dans notre cas, les structures cristallines soupçonnées pour les carbures étaient soit orthorhombique (cémentite) soit hexagonale (carbure epsilon). Nous avons donc procédé par comparaison des $(d_{hkl})_i$ mesurées sur les clichés de diffraction expérimentaux avec la liste des $(d_{hkl})_i$ théoriques correspondant à chacune des phases [16]. Nous avons ensuite retenu la structure théorique qui présente trois distances d_{hkl} coïncidant à 0.05 Å près avec les valeurs expérimentales $(d_{hkl})_1$ $(d_{hkl})_2$ et $(d_{hkl})_3$.

III.2.4 Analyses chimique en spectroscopie de dispersion d'énergie (EDS)

Des mesures ponctuelles EDS ont été réalisées sur les répliques extractives au moyen d'un détecteur SDD (Silicon Drift Diode). L'avantage de ce type de détecteurs est qu'il est ultra-rapide (>300 Kcps), qu'il est caractérisé par un temps mort très faible et une meilleure résolution, en comparaison avec les détecteurs Si(Li). L'analyse quantitative a été ensuite réalisée par la méthode de Cliff-Lorimer [17] à l'aide des coefficients requis calculés par le logiciel INCA de Oxford Instruments.

Ces analyses nous ont permis de déterminer la composition chimique en Ni, des carbures avant et après vieillissement de la structure bainitique

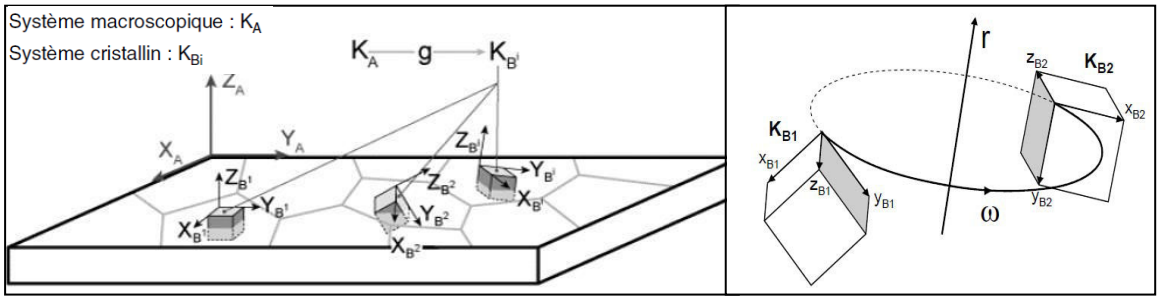
IV. Caractérisation des microtextures de transformation de phase

Des cartographies d'orientations ont été acquises par la technique EBSD. C'est la technique clef de cette étude. L'objectif était de caractériser pour chaque microstructure, les désorientations au sein de la matrice ferritique. L'analyse de la distribution de ces désorientations juste à la fin de la transformation et après "sur-transformation" a en particulier, été utilisée afin de mettre en évidence les évolutions de la microtexture ferritique en condition isotherme.
Ces mêmes cartes EBSD ont également été analysées de façon plus approfondie à partir d'outils de reconstruction, comme détaillé dans la partie suivante.

IV.1. Notion d'orientation et de désorientation:

L'orientation d'un cristal est définie par la rotation qui permet d'amener en coïncidence le repère macroscopique associé à l'échantillon K_A avec le repère K_{Bi} lié au cristal, sans aucun mouvement de translation, comme illustré figure II.14.a.

Quant à la désorientation entre deux cristaux, elle est définie par la rotation qui ramène, sans aucun mouvement de translation, le repère du premier cristal (K_{B1} sur la figure II.14.b) en coïncidence avec le repère du deuxième cristal (K_{B2}). La notation souvent utilisée pour cette rotation est la notation Angle-Axe (ω-$\vec{r}$) comme illustré dans le schéma de la figure II.14.b. Compte tenu de la symétrie cristalline, il existe un ensemble de couples Angle-Axe qui décrit la même désorientation ; on choisit par convention le couple ayant l'angle minimal de rotation en gardant l'axe de rotation dans le triangle standard d'orientation.



(a) (b)

Fig.II.14: (a) Notion d'orientation cristallographique et les repères K_A et K_{Bi} associés, (b) Notion de désorientation. Définition des angles et axes de rotations associés.

IV.2 Rappel concernant la technique l'EBSD

La technique EBSD permet de déterminer l'orientation cristallographique des grains dans un échantillon par indexation des diagrammes de diffraction des électrons rétrodiffusés (connaissant la structure cristallographique de l'échantillon) [18].

La figure II.15 représente la configuration expérimentale nécessaire en MEB pour réaliser des analyses EBSD.

L'échantillon est placé dans un MEB où le faisceau d'électrons primaire est focalisé sur un grain. Les électrons rétrodiffusés au sein de l'échantillon, en incidence de Bragg avec les plans réflecteurs environnants sont diffractés. Pour une famille donnée de plans réflecteurs (hkl), les électrons diffractent selon deux cônes de diffraction symétriques par rapport au plan (hkl). L'intersection de ces deux cônes avec l'écran de phosphore de la caméra EBSD (detector) produit des hyperboles assimilables à deux droites parallèles formant une bande de Kikuchi [19]. L'ensemble des plans diffractant génère ainsi le diagramme de diffraction (ou diagramme « pseudo Kikuchi ») constitué de plusieurs bandes. Pour optimiser le rendement en électrons diffractés, l'échantillon doit être incliné d'un angle de 70°. Par ailleurs, la surface de l'échantillon doit être polie sans écrouissage de surface induit par la préparation.

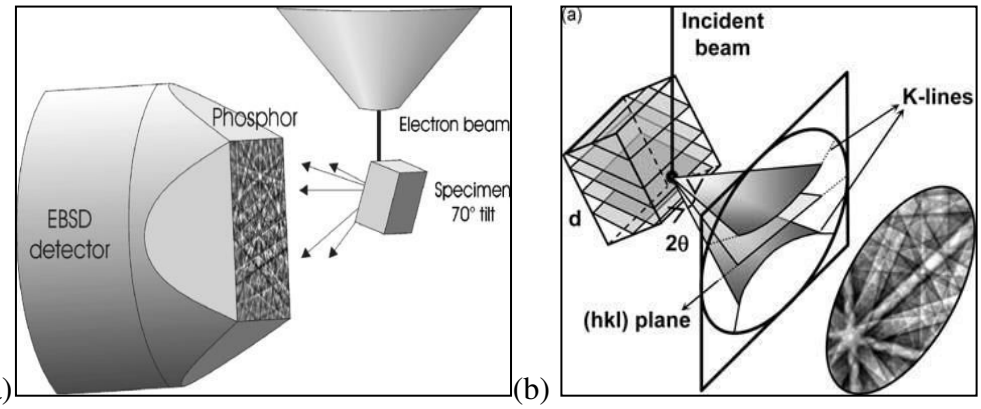


Fig.II.15 : Configuration expérimentale en MEB permettant des analyses ESBD (a) Position de l'échantillon tilté de 70° face au détecteur et (b) la position de la caméra EBSD collectant le signal diffracté sous forme de cônes dont l'intersection avec l'écran donne les lignes de Kikuchi [19].

Le signal de diffraction est ensuite enregistré l'aide d'une caméra CCD (Charge Coupled Device) munie d'un écran phosphorescent qui prend, en temps réel, une image de ces diagrammes. Le dispositif est complété par un logiciel de détection et d'indexation automatique des bandes de Kikuchi pour déterminer l'orientation cristallographique correspondante.

La détection automatisée des bandes de Kikuchi s'effectue à l'aide de la transformée de Hough. Son principe consiste à transformer une droite définie dans l'espace cartésien par l'équation ($y = ax + b$) en un point dans l'espace de Hough des coordonnées polaires (θ,ρ) (θ étant l'angle de la droite avec l'axe x et ρ la distance à l'origine).
En pratique, la transformée est appliquée aux pixels du diagramme de diffraction. Ainsi un pixel à la position (x,y) devient dans le plan transformé une courbe d'équation ($\rho = x \cos\theta + y \sin\theta$). La figure II.16 montre les correspondances entre les deux espaces, l'espace affine du détecteur (à gauche) et l'espace polaire de Hough (à droite). L'ensemble des points d'une droite D de l'espace affine est donc transformé en différentes courbes se croisant en un même point dans l'espace polaire. La droite D est donc un point dans l'espace de Hough. Par ailleurs, cette transformation est appliquée au diagramme de Kikuchi avec une certaine résolution. Cela consiste à traiter directement un ensemble de pixels voisins du diagramme, définissant un espace ($\Delta\theta$, $\Delta\rho$) dans le plan transformé, pour limiter le temps de calcul. En condition standard d'analyse EBSD, l'exploitation du signal de diffraction à l'aide de la transformée de Hough conduit à une précision relative de détermination de l'orientation de l'ordre de 1°.

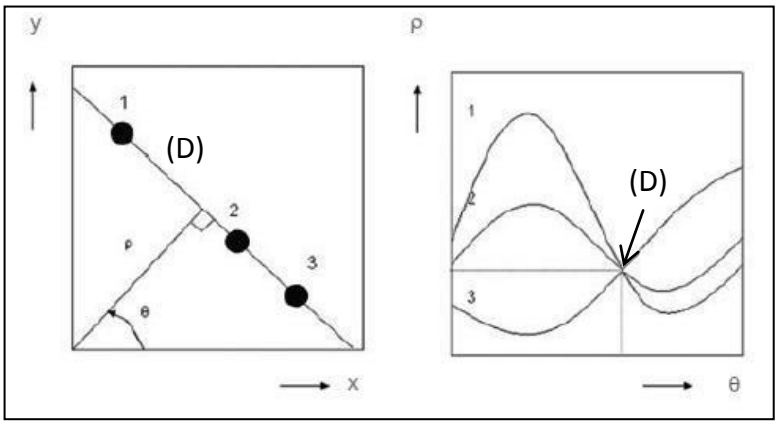
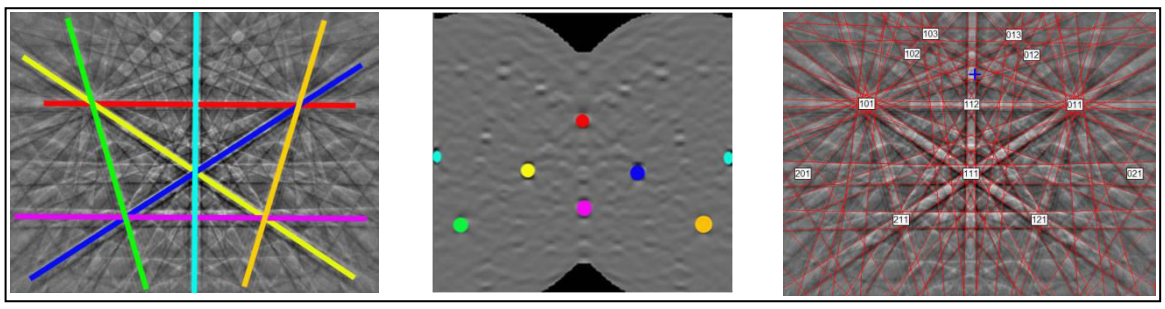


Fig.II.16 : Transformée de Hough convertissant les lignes en points dans l'espace de Hough [20].

Lorsque la technique EBSD est utilisée en mode 'cartographie', le faisceau d'électrons balaye la zone de l'échantillon à analyser en suivant une grille prédéfinie. À chaque position de la grille, le système effectue l'acquisition, la détection des bandes pour déduire l'indexation du diagramme de Kikuchi (Fig.II.17) et stocke les données suivantes :

- Les coordonnées du point
- La nature de la phase détectée
- L'orientation calculée dans le repère lié à l'échantillon
- Le contraste de bandes : Il s'agit d'un indice de qualité de diffraction du diagramme. Il est calculé à l'aide de l'intensité des bandes de diffraction par rapport à l'intensité du bruit de fond. En complément au contraste de bandes BC (Bande Contrast), nous avons utilisé un autre paramètre : le Bande Slope BS pour révéler la microstructure en s'appuyant sur la qualité du signal de diffraction. Ce paramètre s'appuie sur le profil d'intensité de diffraction entre les bords de la bande ; plus la variation de l'intensité est importante, plus la valeur du BS est élevée.



(a) (b) (c)

Fig.II.17: Diagramme de diffraction avec localisation des bandes (a) détectées avec la transformée de Hough (b) pour aboutir à l'indexation du diagramme (c) [20].

IV.3. Acquisition des cartographies EBSD en mode « résolution améliorée »

Les mesures EBSD ont été réalisées avec le MEB FEG (canon à effet de champ) JEOL 6500 équipé du système EBSD 'Oxford Instrument' au LEM3. Il comprend la caméra numérique « haute résolution » Nordlys S et le logiciel d'acquisition des données AZtec.

Lors de l'acquisition des données EBSD, nous avons cherché à obtenir des données d'orientation avec une bonne résolution angulaire et spatiale afin de révéler au mieux les très faibles désorientations au sein des domaines bainitiques. En fait, dans le processus de traitement du diagramme de Kikuchi, deux facteurs principaux influencent la résolution angulaire et donc la précision relative de l'orientation déterminée : la qualité du signal de diffraction puis la stratégie d'analyse des diagrammes.
La qualité du signal de diffraction pour un matériau donné peut être améliorée en optimisant les paramètres d'acquisition du diagramme, en particulier le choix de la résolution de travail (binning) du capteur CCD de la camera EBSD, le temps d'intégration du signal et le choix de moyenner plusieurs clichés pour améliorer le rapport signal sur bruit.

Dans notre cas, le choix de ces paramètres résulte d'un compromis entre temps d'acquisition et résolutions spatiale et angulaire des données. Ainsi les cartographies d'orientations ont toutes été acquises sous une tension d'accélération de 15 kV, avec un courant de 3.3 nA, permettant un signal de qualité acceptable pour une résolution de la caméra de 336 x 256 pixels (c.à.d. avec un binning 4x4) et avec un temps d'intégration de 24 ms par cliché sans moyennage. Sous ces conditions, on estime que la résolution spatiale du signal de diffraction est d'environ 50/70 nm pour les aciers [21]. Pour un champ de 1500x1150 pixels avec un pas de 0.1 µm, le temps d'acquisition est de 24h.

La stratégie d'analyse des diagrammes disponible dans les logiciels commerciaux est toujours basée sur une transformée de Hough. Cependant, pour obtenir une détection optimale des bandes de Kikuchi, nous avons utilisé le mode « précision améliorée » du logiciel AZtec [22]. Ce mode améliore la détection des bandes de Kikuchi en prenant en compte leur forme hyperbolique pour affiner l'ajustement entre les bandes détectées et celles simulées. Il s'inspire de la stratégie proposée par Maurice et et Fortunier sous l'intitulé « 3D Hough Transform » [19]. Au niveau du logiciel AZtec, cela se traduit en trois étapes :

1. Application d'une première transformée de Hough classique à basse résolution pour détecter un maximum de 12 bandes (12 points dans l'espace de Hough).
2. Indexation des bandes pour associer à chaque bande détectée le plan (hkl) correspondant (connaissant les phases en présence) et déduire l'orientation approximative (le MAD : Mean Average Deviation, paramètre qui traduit l'écart entre les bandes détectées et les bandes simulées est alors de l'ordre de 1°)
3. Application d'une deuxième transformée de Hough à haute résolution, limitée aux domaines (ρ, θ) des 12 bandes détectées. A partir de l'orientation approximative, les bandes (hkl) théoriques sont simulées dans l'espace de Hough en prenant en compte leur forme hyperbolique. L'orientation précédente est affinée en ajustant la simulation aux données expérimentales.

La résolution angulaire des données EBSD « classiques » est ainsi améliorée sans impact sévère sur la vitesse d'acquisition. Le cliché simulé et celui détecté se recouvrent alors avec une déviation beaucoup plus faible que lors de la première étape.

Pour nos cartes EBSD, la résolution angulaire peut être estimée à 0.3°. Nous avons en effet vérifié que les lignes continues désorientées jusqu'à 0.3° suivent effectivement des sous-joints révélés par les variations du contraste de bande et confirmés par imagerie BSE à haute résolution. Un exemple mis en évidence sur l'un des échantillons étudiés dans cette thèse, est montré par la figure II.18.

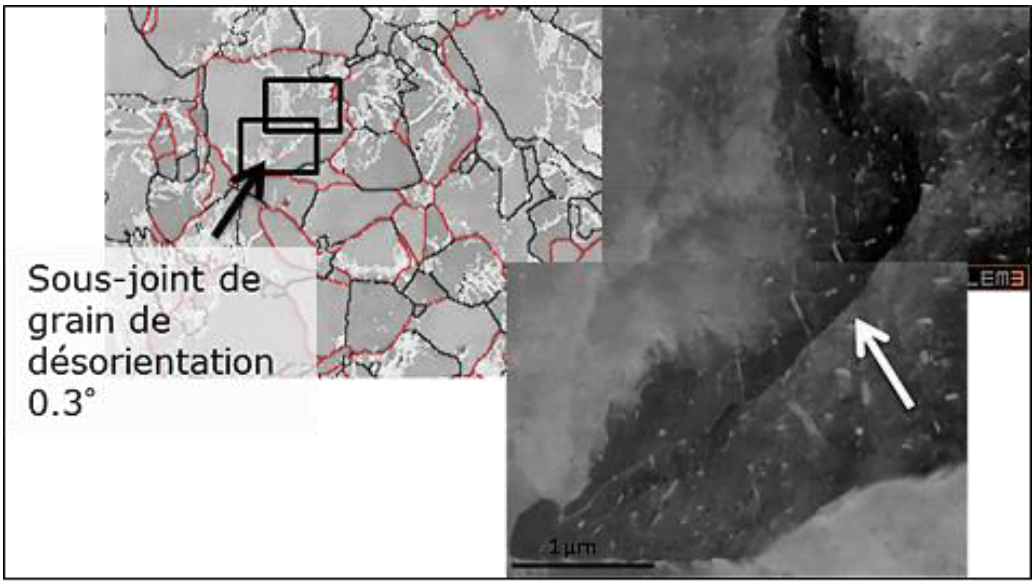


Fig.II.18 : Sous-joint de désorientation 0.3° détecté en EBSD à résolution améliorée et confirmé en imagerie MEB BSE à haute résolution.

IV. 4. Exploitation standard des données EBSD

Le post-traitement des données a été réalisé avec le logiciel Channel5 (version 5.11). L'ensemble des données acquises, permet de tracer des cartographies d'orientations et de désorientations. Pour la majorité des cartes, le taux d'indexation était supérieur à 95%. Dans certains rares cas, nous avons utilisé des cartes avec des taux plus faibles (jusqu'à 85%) mais sans conséquence sur les conclusions. Les cartes ont été corrigées avant exploitation, en supprimant les éventuelles erreurs d'indexation et en extrapolant les points non indexés. Ces points étaient essentiellement localisés aux joints de lattes et au niveau de porosités. Par conséquent, les données ont été extrapolées jusqu'à recouvrir 100% de la carte EBSD.

Nos exploitations standard des données EBSD se basent principalement sur l'analyse des cartes de désorientations angulaires superposées aux cartes du contraste de bande « CB » (ou aux cartes du band slope « BS ») et sur les histogrammes de désorientations angulaires associés.

La figure II.19 présente les représentations « type » (et leur code de couleur) que nous avons utilisé pour mettre en évidence les désorientations et leur distribution. Il s'agit d'une carte de désorientations (Fig.II.19.a) mettant en évidence les joints de grains présents dans la microstructure en attribuant une couleur par intervalle de désorientations. En rouge, nous représenterons les joints fortement désorientés > 45° qui contiennent les joints de « paquets » et les joints de « blocs » en particulier ceux à 60°. En blanc nous représenterons les désorientations faibles qui peuvent exister entre les lattes (c'est à dire les joints de sous-blocs). Le reste des désorientations aléatoires, y compris celles qui tracent les joints d'anciens grains austénitiques seront représentées en noir.

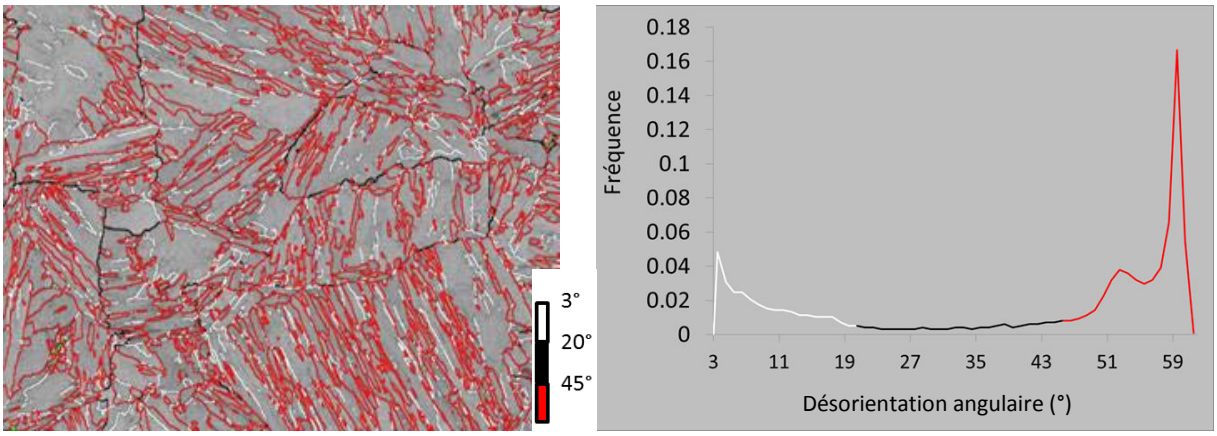


Fig.II.19: (a) Carte EBSD « type » employée dans les travaux de cette thèse et (b) l'histogramme des désorientations angulaires associé.

L'histogramme des désorientations angulaires entre pixels voisins (Fig.II.19.b) traduit la distribution de ces joints sur l'ensemble de la carte. Son allure marque des pics caractéristiques associés aux désorientations spécifiques entre blocs et paquets, évoquées ci-dessus. Son analyse permet à la fois, de comparer les types des produits de transformation (juste après transformation) selon les classifications cristallographiques vues au premier chapitre, et de mettre en évidence leurs évolutions après un traitement thermique de « sur-transformation ».

Cependant, l'angle de désorientation seul ne caractérise pas complètement la désorientation entre deux domaines ferritiques. Pour être rigoureux, il faut également considérer l'axe. En particulier, en fonction de la relation d'orientation (RO) considérée, les axes de désorientation associés à l'angle de 60° peuvent être très différents et être un marqueur de la RO suivi lors de la transformation. Nous avons donc essentiellement analysé les joints de lattes à 60° et identifié les désorientations théoriques (découlant d'une RO donnée) dont ils étaient le plus proche.
Pratiquement, le calcul est fait avec un logiciel non commercial programmé par Lionel Germain et compatible avec Channel 5. L'utilisateur liste sous forme de couples (Angle/<Axe>) les désorientations théoriques à considérer. Le résultat est visualisé à l'aide d'une carte que l'on appellera carte de « localisation de désorientations théoriques »: chaque joint est coloré selon la couleur associée à la désorientation théorique dont il est le plus proche (en respectant un écart maximum de 2°). Un tableau résultat quantifie la fraction de chaque désorientation théorique considérée.

V. Organisation des variants au sein des ex-grains austénitiques

Dans cette partie, nous présentons notre méthodologie pour caractériser les variants cristallographiques présents au sein des ex-grains austénitiques ainsi que leur organisation spatiale en paquets, blocs et sous-blocs.

Ce type de caractérisation nécessite de regrouper sur une cartographie EBSD les domaines cristallins par ex-grains austénitiques d'appartenance, d'identifier la RO qui les lie et d'affecter à chaque domaine l'un des 24 variants qui lui correspond. Cependant, toutes nos cartographies EBSD ont été acquises à température ambiante sur des microstructures transformées qui ne présentent pas d'austénite résiduelle. Ce travail implique donc une préalable étape de

reconstruction des ex-grains austénitiques (une méthode indirecte dont nous avons déjà discuté au chapitre I).

Aussi pour réaliser ce travail, nous avons utilisé deux codes de calculs développés au LEM3 par Lionel Germain : (1) Merengue 2 pour la reconstruction de la microtexture austénitique à partir de la microtexture de transformation et la recherche de l'OR moyenne [14] et (2) DECRYPT[4] pour identifier et quantifier l'organisation spatiale des variants connaissant les cartes parentes et filles (héritées).

V.1. Le principe de la reconstruction

Les méthodes de reconstruction s'appuient sur l'exploitation de la relation d'orientation (RO) qui lie les réseaux de la phase parente et fille. Elle consiste à identifier sur la cartographie d'orientation de la phase fille, des ensembles de domaines cristallins voisins (correspondant à des variants cristallographiques) pouvant être issus avec une forte probabilité d'un unique grain parent (dont on peut alors calculer l'orientation a posteriori) [23-25].

Théoriquement, chaque grain austénitique peut se transformer en un nombre limité de variants cristallographiques, dont on peut déterminer les orientations en considérant la RO et les éléments de symétries rotationnelles des deux phases. Ainsi lorsque l'orientation d'un grain parent g_P et la RO Δg sont données, l'orientation du $i^{ième}$ variant cristallographique, g_F^i, peut être décrite par la relation :

$$g_F^i = \Delta g . P_i . g_P \quad \text{(II.8)}$$

avec P_i est le $i^{ième}/n_i$ élément de symétrie rotationnelle de la phase parente.
On en déduit l'ensemble des orientations individuelles (OI) des variants équivalents par symétrie :

$$\{F_j . g_F^i\} = \{F_j . \Delta g . P_i . g_P\}_{j=1...nF} \quad \text{(II.9)}$$

avec F_j est le $j^{ième}/n_F$ élément de symétrie rotationnelle de la phase fille.

Inversement, chacun de ces variants peut théoriquement être issu d'un ensemble d'orientations parentes potentielles décrit par :

$$\{g_P^i\} = \left\{\Delta g^{-1} . F_i . g_F\right\}_{i=1\ldots nF} \quad \text{(II.10)}$$

En considérant l'ensemble des orientations équivalentes par symétrie, on obtient :

$$\{P_j . g_P^i\} = \left\{P_j . \Delta g^{-1} . F_i . g_F\right\}_{i=1\ldots nF,\ j=1\ldots nP} \quad \text{(II.11)}$$

En considérant plusieurs variants issus du même grain parent, il est donc possible de déduire l'orientation de ce dernier ; il s'agit de l'unique élément commun aux différents ensembles d'orientations parentes associés aux variants considérés. Du fait de la précision des données d'orientations mesurées par EBSD et de la dispersion de la RO observée expérimentalement, il est nécessaire d'introduire une tolérance angulaire dans la recherche de l'unique orientation parente commune aux variants considérés.
Lorsque ce principe est appliqué pour reconstruire une carte parente à partir d'une carte fille par transformation de phase, des difficultés supplémentaires sont à prendre en compte dans l'algorithme de recherche de l'unicité de l'orientation parente. En particulier, les variants issus d'un même parent ne sont pas directement identifiable sur une carte EBSD. Ainsi plutôt que de chercher le parent unique, on cherche le parent le plus probable, c'est à dire celui le plus compatible avec le variant considéré et ses variants environnants [25].

[4] DECRYPT : Direct Evaluator CRYstallographic Phase Transformation

Par ailleurs, appliqué aux aciers, le problème se complique encore du fait de certaines spécificités de la transformation de phase. On distingue d'une part la non-unicité de la RO et/ou sa forte dispersion, dont nous avons déjà discuté au Chapitre I (paragraphe II.1.5). Même si les différentes RO (KS, NW, GT) sont proches, le choix de l'une ou de l'autre influencent significativement le résultat du recalcul de la microtexture austénitique, comme illustré sur la figure II.20. Cette figure montre les résultats de la reconstruction d'une microstructure bainitique en fonction du choix de la RO (entre KS, NW ou GT ou à partir d'une RO mesurée expérimentalement). Ce choix influe notablement sur le taux de reconstruction de la carte originale.

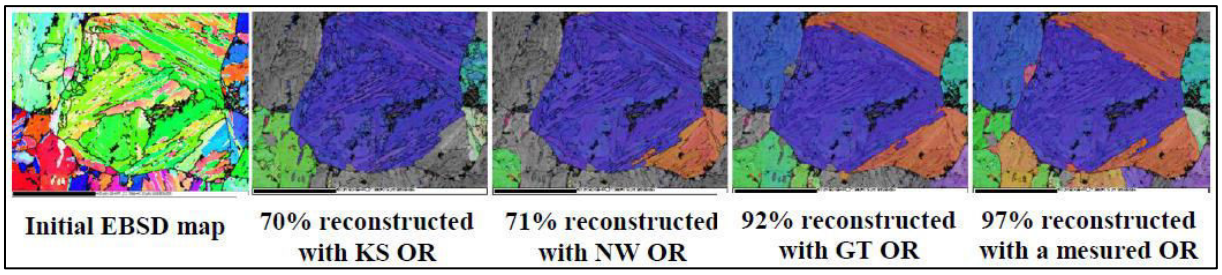


Fig.II.20 : Cartographie d'orientation d'une microstructure bainitique suivi de reconstructions utilisant différentes RO [25]

D'autre part, la dispersion d'orientations au sein des variants hérités due à la déformation plastique induite par la transformation de phase peut aussi compliquer la procédure de reconstruction. Cela nécessite d'augmenter les tolérances angulaires dans la recherche de l'orientation parente. Inversement, cela va aussi augmenter le nombre de situations ambiguës (situations pour lesquelles différentes orientations austénitiques sont possibles). S'ajoute encore la présence importante de macles dans la microstructure austénitique. En effet, ces macles sont particulièrement difficiles à reconstruire de façon fiable car elles se transforment souvent en favorisant les variants communs au grain et à la macle.
Par conséquent, les méthodes de reconstruction sont d'autant plus efficaces pour reconstruire la carte parente que :

- la RO est unique et suivie le plus strictement possible lors de la transformation.
- le voisinage d'un domaine hérité sur une carte EBSD définit plusieurs variants (leur nombre devant être suffisant pour permettre l'identification de l'unique parent commun).

V.2. Les étapes de reconstruction avec Merengue2

Dans cette partie, nous présentons la méthodologie de reconstruction mise en œuvre dans Merengue2 pour optimiser la reconstruction des microtextures parentes, et prendre en compte au mieux les difficultés liées au cas des aciers. La reconstruction se fait par itération en distinguant 6 étapes principales:

Etapes préliminaires :

1. Reconnaissance des domaines cristallins de la phase héritée
2. Choix d'une OR de départ

Etapes itératives de 3 à 6 jusqu'à saturation du taux de reconstruction

3. Identification de fragments de parent fiables (tolérance ω_{frag} de 3°)
4. Elargissement des fragments (tolérance ω_{enl} jusqu'à 5°)
5. Gestion des ambiguïtés
6. Optimisation de la RO

Le contenu des différentes étapes est détaillé dans [25] et est rappelé succinctement ci-dessous.

L'étape préliminaire de la reconstruction :
Il s'agit d'abord à décomposer la carte EBSD en un ensemble de domaines cristallins qui regroupent des pixels voisins d'orientations proches. Cette étape est réalisée avec une procédure optimisée, appelée ALGrID (Anti-Leak Grain Identification) [26]. Elle permet d'identifier efficacement des sous-domaines D_i d'un domaine cristallin. Idéalement, dans une microstructure en lattes, il s'agirait d'identifier chaque latte. Cependant cette aptitude ne dépend pas uniquement de la procédure de traitement mais également de la qualité de l'acquisition EBSD et de la résolution angulaire et spatiale ultime accessible en EBSD. La procédure exploite un intervalle de tolérances angulaires (dans notre cas : X_{max}=3° et X_{min}=0.5°) pour regrouper les pixels ; X_{max} permet d'identifier des domaines primaires regroupant classiquement les pixels désorientés de proche en proche d'une valeur < X_{max}. Au sein de ces domaines primaires, on identifie des sous-domaines en cherchant un chemin de désorientation continu fermé sur le domaine primaire (le chemin retenu est celui qui maximise la désorientation de X_{max} à X_{min}).

Puis les informations de la carte sont transformées en graphe pour optimiser les calculs. Chaque sous-domaine D_i est associé à un nœud du graphe qui stocke la phase du domaine, son orientation moyenne (s'écartant peu des valeurs d'orientations individuelles grâce à l'identification de sous-grains D_i avec ALGRID) ainsi que sa surface. À chaque arête du graphe, sont associées la longueur du joint de grains entre deux domaines voisins et la désorientation moyenne entre les deux domaines (cette désorientation est la moyenne des désorientations mesurées le long du joint).

Etape 3: Identification de fragments de parent fiables (avec une tolérance ω_{frag})
L'étape itérative démarre par la recherche sur la carte EBSD de fragments de parents fiables. On considère chaque sous-domaine D_i et on exploite les variants de son voisinage pour rechercher son orientation parente la plus probable. Le sous-domaine D_i devient le fragment d'un grain parent quand une orientation parente a été trouvée.
Cette recherche consiste à calculer l'ensemble des orientations parentes potentielles associées à l'orientation moyenne du sous-domaine D_i (suivant l'équation II.10). Pour chaque parent potentiel (ou élément de symétrie F_i), on calcule les variants théoriques déduits de ce parent potentiel et leurs écarts avec les variants voisins de D_i. L'élément de symétrie retenu Fi (et donc le parent) est celui qui minimise la désorientation entre les variants expérimentaux et théoriques (avec une tolérance maximale ω_{frag}).

Etape 4: Elargissement des fragments (tolérance ω_{enl})
L'étape d'élargissement des fragments fiables ainsi identifiés, permet de compléter la reconstruction. On considère les domaines voisins de proche en proche encore non affectés à un fragment parent. Ces domaines sont intégrés dans le grain parent s'ils sont en RO avec l'orientation du fragment parent, en augmentant progressivement la tolérance jusqu'à ω_{enl}. C'est à nouveau un processus itératif : il s'arrête lorsque plus aucun sous-domaine D_i hérité ne peut être attribué à un fragment de parent.
Lors de ces itérations, un sous-domaine D_i peut être en RO avec plusieurs grains parents voisins d'orientations différentes. Il s'agit alors d'un domaine ambigu que le logiciel garde en mémoire et peut gérer dans une étape ultérieure (non détaillée ici).

Etape 6: Optimisation de la RO

La méthode utilisée est appelée « XABX ». Elle s'inspire d'une méthodologie décrite dans [27] et qui permet de rechercher à la fois la RO et l'orientation parente à partir des désorientations entre 3 variants issus d'un grain parent non déformé. La version implantée dans MERENGUE 2 considère que l'orientation parente est connue. Par conséquent, elle recherche la RO locale qui minimise les écarts entre chaque orientation parente et l'orientation héritée correspondante. Ensuite, les ROs locales sont moyennées sur la carte et la nouvelle RO 'moyenne' est ré-injectée dans le système. La procédure est réitérée depuis l'étape 3 jusqu'à ce que le taux de reconstruction n'augmente plus. Merengue2 permet d'avoir en sortie la carte parente reconstruite où est stockée, pour chaque pixel l'orientation parente, associée à l'élément de symétrie F_i retenu, en RO stricte avec l'orientation héritée comme illustré sur la figure II.21. Cette figure montre une cartographie d'orientation reconstruite de la phase austénitique mère à partir d'une bainite inférieure. Le code couleur correspond à l'orientation. Les grains austénitiques polygonaux et leurs macles thermiques internes sont clairement visibles.

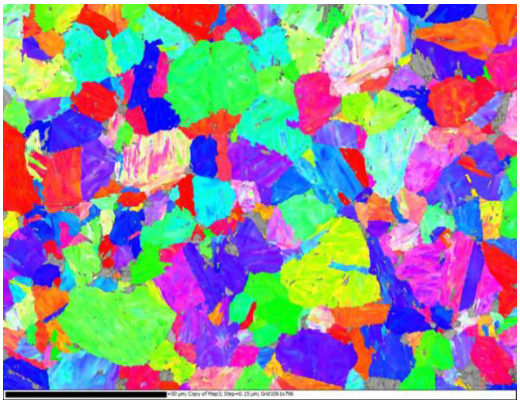


Fig.II.21: Exemple de cartographie EBSD en figures de pôle inverse parallèlement à l'axe Z de la phase austénitique mère reconstruite d'une bainite inférieure (réalisée pour cette étude).

V.3 Organisation spatiale des variants en blocs et en paquets avec Decrypt

L'analyse avec Merengue2 est ensuite complétée par une analyse à l'aide du logiciel Decrypt qui permet de visualiser l'organisation spatiale des variants (V1 à V24) au sein des grains parents et de quantifier leur répartition en paquet/bloc/sous-bloc.

Le principe de fonctionnement de Decrypt est le suivant : les données d'entrée sont deux cartes d'orientations, de même taille de pixels, correspondant respectivement à la phase parente et à la phase héritée par transformation de phase. Dans nos travaux, les cartes parentes ont été obtenues par reconstruction. Les pixels appartenant aux grains parents ont été identifiés et les orientations correspondantes moyennées pour utiliser une orientation moyenne par grain parent.

La première étape de Decrypt consiste à calculer la relation d'orientation moyenne entre les deux phases. Ce calcul s'effectue en calculant pixel à pixel la RO locale qui lit l'orientation parente et héritée. On en déduit une RO moyenne sur l'ensemble de la carte. Lorsque la carte parente correspond à une carte reconstruite, on trouve une RO moyenne très proche voir identique à celle calculée par itération avec Merengue. Ensuite, il s'agit d'associer à chaque pixel de la carte héritée, le numéro du variant théorique (V1 à V24) le plus proche qui lui correspond dans la transformation de phase avec respect de la RO moyenne (dans la limite d'une tolérance de 10° pour éliminer du calcul les pixels correspondant à des erreurs d'indexation.

Les pixels de la carte « fille » sont ensuite regroupés en sous-blocs. Un sous-bloc regroupe des pixels de proche en proche, appartenant à la même phase, au même grain parent et au même variant Vi. Ensuite, ces sous-blocs sont regroupés en bloc puis en paquet suivant le même principe. Le classement en paquets, blocs et sous-blocs est effectué selon le tableau II.5 (cette organisation hiérarchique est identique à celle utilisée par Morito et al. [28] vue au chapitre I). Le tableau contient les 24 variants possibles et montre qu'il peut y avoir, quatre paquets par grain parent, trois blocs par paquet et deux sous-blocs (variants) par bloc).

Variant no.	Plane parallel	Direction parallel	CP group	Bain group
V1	$(111)_\gamma//(011)_\alpha$	$[\bar{1}01]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$	CP1	B1
V2		$[\bar{1}01]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B2
V3		$[01\bar{1}]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B3
V4		$[01\bar{1}]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B1
V5		$[1\bar{1}0]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B2
V6		$[1\bar{1}0]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B3
V7	$(1\bar{1}1)_\gamma//(011)_\alpha$	$[10\bar{1}]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$	CP2	B2
V8		$[10\bar{1}]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B1
V9		$[\bar{1}\bar{1}0]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B3
V10		$[\bar{1}\bar{1}0]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B2
V11		$[011]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B1
V12		$[011]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B3
V13	$(\bar{1}11)_\gamma//(011)_\alpha$	$[0\bar{1}1]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$	CP3	B1
V14		$[0\bar{1}1]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B3
V15		$[\bar{1}01]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B2
V16		$[\bar{1}01]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B1
V17		$[110]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B3
V18		$[110]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B2
V19	$(111)_\gamma//(011)_\alpha$	$[\bar{1}10]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$	CP4	B3
V20		$[\bar{1}10]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B2
V21		$[01\bar{1}]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B1
V22		$[\bar{1}\bar{1}0]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B3
V23		$[101]_\gamma//[\bar{1}\bar{1}1]_\alpha$		B2
V24		$[101]_\gamma//[\bar{1}11]_\alpha$		B1

Tab.II.5 : Classement en paquets (CPP= Close-Packed planes), blocs (CPD= Close-packed directions) et sous-blocs (B= Groupe de Bain) [28].

VI. Etude DRX à haute énergie sur ligne de lumière synchrotron

Afin d'obtenir des informations d'ordre cinétique, nous avons voulu suivre *in situ* les évolutions microstructurales de nos aciers N1 et N2 (phases, densités de dislocations) lors des transformations bainitiques étagés (BMIXTE) et des traitements thermiques de « sur-transformations » (BMIXTE-ST). Ces études ont été réalisées par Diffraction des Rayons à Haute Energie sur une ligne de lumière synchrotron. Dans la configuration utilisée, cette technique possède aussi l'avantage de permettre d'investiguer les échantillons en transmission et donc de sonder un grand volume par rapport aux techniques de microscopie (typiquement 500 µm x 500 µm x 2 000 µm). Grâce aux grands flux de ces instruments et à des détecteurs performants, des fréquences d'acquisition de 10 Hz ont pu être atteintes ce qui permet de suivre les évolutions métallurgiques.

Dans le cadre de cette thèse, deux séries d'expériences ont été réalisés avec des configurations en transmission assez similaires sur les lignes de lumière Synchrotron à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) /France et au DESY (Deutsches Elektronen-Synchrotron) / Allemagne.

Cette configuration est représentée sur la figure II.22. Le faisceau de photons X incident est monochromatique et traverse l'échantillon étudié qui se situe dans un four ou sur un support aux parois transparentes. Si les plans atomiques de la structure cristalline étudiée sont en position de Bragg, une partie de ce faisceau incident est diffracté. Nos échantillons étant polycristallins et le volume analysé suffisamment grand (typiquement plus de 50000 grains austénitiques), on observe sur un écran 2D détecteur de photons des anneaux dits de Debye Scherrer. Chaque anneau correspond à une famille de plans atomiques diffractants et est la contribution d'un grand nombre de cristaux. C'est pour cette raison, que l'anneau est continu en termes d'intensité.

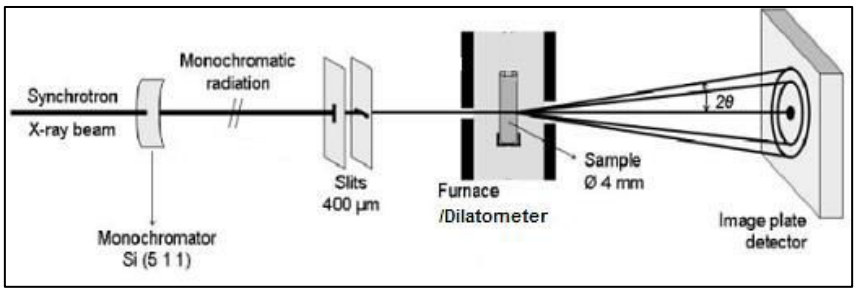


Fig.II.22 : Configuration des expériences conduites sur ligne de lumière synchrotron (Diffraction des Rayons X à Haute Energie en transmission avec détecteur plan et faisceau monochromatique). Figure fournie par Guillaume Geandier (IJL).

- Essais post mortem à l'ESRF

La première série d'expériences réalisées à l'ESRF a permis d'étudier des échantillons post mortem à température ambiante (traités thermiquement en laboratoire et analysés directement sans chauffage). Elles ont eu lieu sur la ligne ID15B. La figure II.23 montre une photographie du hutch expérimental. Les mesures ont été réalisées sous une énergie de 90 keV (soit une longueur d'onde de Λ=0.142 nm). Le détecteur plan de marque Perkin-Elmer (avec le cadre marron sur la photographie) a permis d'enregistrer des anneaux de Debye-Scherrer complets (7 pour la structure ferritique). Pour cette étude de faisabilité préliminaire aux essais in situ, nous avons travaillé principalement sur les échantillons BMIXTE obtenus en bain de sels (Tab.II.4).

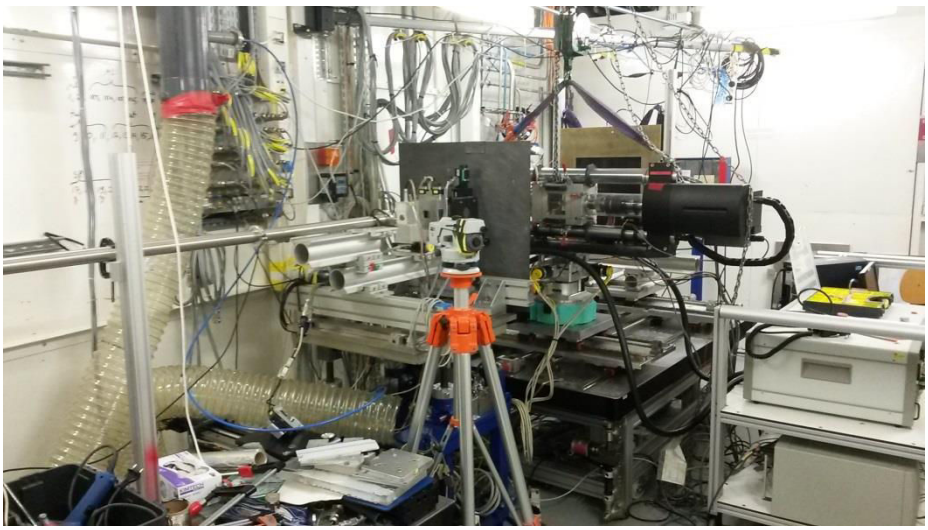


Fig.II.23 : Dispositif expérimental de la ligne ID15B de l'ESRF

- Essais in situ à DESY

La seconde série d'expériences ont été réalisés à DESY sur la ligne Petra III - P07 en condition *in situ*. Cette ligne est dédiée aux sciences des matériaux. La figure II.24 montre des photographies du hutch expérimental (dilatomètre au premier plan puis détecteur 2D) ainsi que le dispositif de chauffage par induction du dilatomètre. Cette ligne opère sous 100keV d'énergie (soit longueur d'onde Λ=0.124 nm). La haute énergie permet de travailler en transmission sur des échantillons massifs avec une fréquence d'acquisition allant jusqu'à 10 images/s grâce à des écrans 2D Perkin-Elmer. Le faible ratio bruit/signal de cette ligne rend possible la détection des phases minoritaires comme la cémentite.

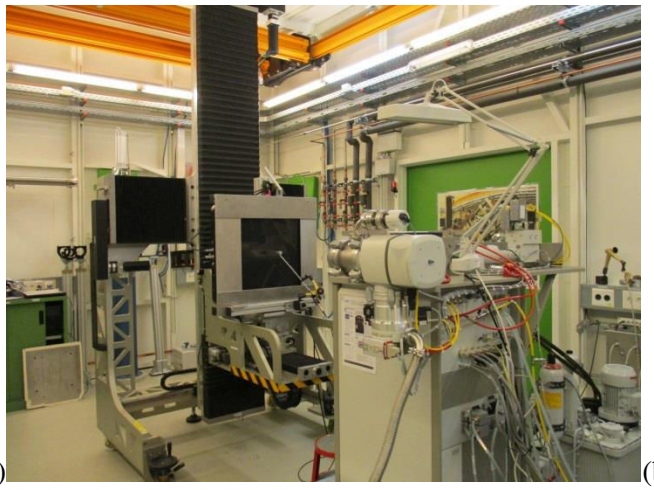
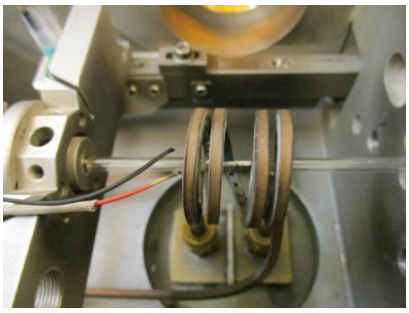
(a)  (b) 

Fig.II.24 : (a) Dispositif expérimental de la ligne PETRAIII P07 du DESY (b) Chambre de chauffage par induction du dilatomètre Bähr

Les traitements thermiques ont été assurés par un dilatomètre BAHR (chauffage par induction et refroidissement par soufflage d'hélium) identique à celui utilisé par ailleurs chez Arcelormittal. Les échantillons utilisés ont été découpés sous forme de parallélépipèdes (10 mm x 4 mm x 1 mm) et illuminés perpendiculairement au plan de laminage. La température est mesurée par un thermocouple soudé sur la tranche de l'échantillon à l'aplomb de la zone illuminée (400 µm x 400 µm).

Nous avons réalisé principalement deux expériences compte tenu du temps de faisceau disponible. Elles visaient à explorer la décomposition d'une structure mixte BHT et BBT obtenues avec les nuances 1 et 2 à deux températures en condition de sur-transformation à 340°C pour la nuance 1 et à 380°C pour la nuance N2 (conditions BMIXTE-ST2 selon notre nomenclature).

VI.1. Post traitement et analyse métallurgique des données de diffraction

Environ 5.000 clichés de diffraction 2D ont été acquis pour chaque essai *in situ*. Chaque cliché 2D (anneaux de Debye Scherrer) est intégré circulairement pour obtenir un diffractogramme 1D plus conventionnel et partiellement détexturé par cette opération. La figure II.25 montre un exemple de cliché 2D obtenu lors de nos expériences et le diffractogramme 1D correspondant après intégration. Nous avons réalisé cette opération en utilisant le logiciel FIT2D disponible sur le site de l'ESRF [29].

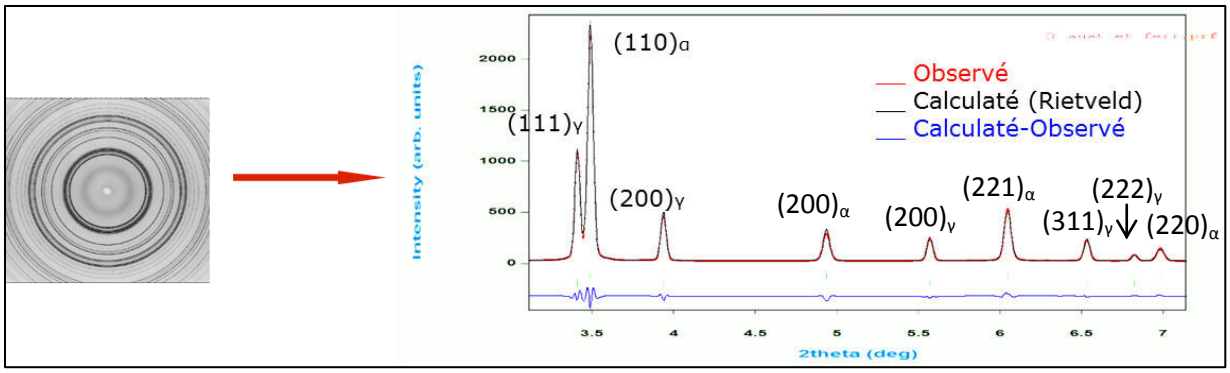


Fig.II.25 : (a) Cliché de diffraction 2D (Anneaux de Debye-Scherrer) (b) Diffractogramme 1D Intensité en fonction de l'angle 2θ montrant les pics de ferrite α (CC) et d'austénite γ (FCC).

Une fois les différentes phases en présence identifiées (ici principalement ferrite et austénite, même si la cémentite est observable en très petite quantité, typiquement moins de 1%), l'analyse Rietveld consiste à simuler le diffractogramme expérimental par des fonctions paramétrées, par exemple des fonctions de type Gauss, Voigt ou pseudo-Voigt (utilisée dans notre cas). Les paramètres de ces fonctions servent à décrire l'intensité des pics de diffraction, leurs positions, leurs largeurs, la forme de leurs pieds, mais aussi le fond continu de chaque diffractogramme. On cherche à miniser l'écart entre diffractogrammes simulés et observés par la méthodes des moindres carrés.

Pour notre étude, nous avons utilisé le logiciel Fullprof [30], qui permet des analyses automatisées en série.

Les paramètres des fonctions mathématiques peuvent être dans un second temps reliés à des paramètres métallurgiques comme la fraction de phase massique et les paramètres de maille des phases. Ces valeurs seront intéressantes pour suivre par exemple les cinétiques de transformation bainitiques initiales ou la sur-saturation en carbone dans la bainite.

Elles peuvent aussi donner des indications sur la déformation plastique dans les phases grâce à la théorie de Williamson-Hall [31]. Pour un diffractogramme donné, cette théorie corrèle les largeurs à mi-hauteur de chaque pic de diffraction à un paramètre ε décrivant un état de déformation de la structure et à une taille L de cristallite (correspondant au plus petit domaine diffractant) en fonction de l'angle de diffraction θ. La largeur à mi-hauteur d'un pic (fonction que nous nommerons FWHM pour Full Width at Half Maximum) situé à l'angle θ est alors donnée par la fonction :

$$\mathrm{FWHM}(\theta).\cos(\theta) = C\varepsilon.\sin(\theta) + \frac{k\lambda}{L} \quad \text{(II.12)}$$

où λ la longueur d'onde, C un facteur de contraste de dislocations qui est en général pris égal à 4 et K la constante dite de Scherrer, égale à 1 pour les cristaux de symétrie cubique [18]. En pratique, il faut donc mesurer les largeurs à mi-hauteur de chaque pic observé et reporter les valeurs mesurées de [FWHM(θ).cos(θ)] en fonction de sin(θ). Dans l'idéal, on peut observer un alignement des points expérimentaux et donc déterminer la pente de cette droite (Cε) et ses ordonnées à l'origine (kλ/L). La détermination de ε et L sera d'autant plus fiable que le nombre de pics observé sera grand. La figure II.26 montre un exemple de droite selon cette méthode avec 7 pics (7 anneaux de Debye-Scherrer). Pour pouvoir traiter en série les

nombreux diffractogrammes, les largeurs expérimentales[5] de pics sont exprimées à l'aide de trois fonctions u, v et w selon la formule de Caglioti :

$$FWHM(\theta)=\sqrt{u\tan^2(\theta)+v\tan(\theta)+w} \quad (II.13)$$

Ces trois paramètres sont déduits directement pour chaque diffractogramme par nos analyses Rietveld.

Comme la déformation ε est liée à la densité de dislocations au sein du matériau [32-34], suivre son évolution en fonction du temps permet d'étudier les cinétiques de restauration en condition de maintien isotherme.

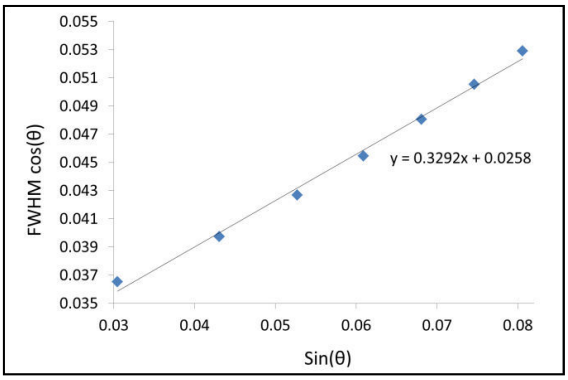


Fig.II.26 : Représentation graphique des largeurs à mi-hauteur (FWHM) des 7 pics de diffraction en fonction de l'angle de diffraction θ pour de l'échantillon BMIXTE de la nuance N1. L'alignement des points expérimentaux est notable et rend possible la détermination fiable des pentes et ordonnées à l'origine de la droite. Ces dernières valeurs peuvent être reliées à un état de déformation de la structure et à une taille de cristallite.

Les résultats de la méthode Williamson-Hall pour les échantillons post-mortem, ont été confirmés et approfondis par le biais d'une analyse des raies de diffraction basée sur un algorithme de Monte-Carlo développé par G.Ribarik [35] et permettant de calculer les valeurs de densité des dislocations ainsi que la taille de cristallite.

VII. Références

[1] M. Soliman, H. Palkowski, Arch. Civ. Mech. Eng. 16, 2016, 403-412.
[2] S.H. He, B.B. He, K.Y. Zhu, M.X. Huang, Acta Materialia, 135, 2017, 382-389.
[3] Edgar C. Bain, Functions of the alloying elements in steel, USA, 1939.
[4] B. Krebs, Caractérisation et prévision des structures en bandes dans les aciers Dual-Phase_ Lien avec les propriétés d'endommagement, France, 2009.
[5] J. C. Hell, Aciers bainitiques sans carbure : Caractérisations microstructurale multi-échelle et in situ de la transformation austénite-bainite et relations entre microstructure et comportement mécanique, France, 2011
[6] G.E.Totten, M.A.H. Howes, Steel Heat Treatment Handbook, Marcel Dekker, Inc., USA, 1997.

[5] $Largeur_{observée} = Largeur_{échantillon} + Largeur_{instrumentale}$. Les valeurs calculées par analyse Rietveld doivent donc être corrigées en soustrayant la largeur instrumentale déduite à l'aide des diffractogrammes standards de LaB_6.

[7] H.K.D.H Bhadeshia, Thermodynamic analysis of isothermal transformation diagrams, Metal Science 16, 1982, 159.
[8] K.E. Thelning, Steels and its Heat Treatment, Butterworth, UK, 1984.
[9] J. Barralis, G. Maeder, Métallurgie Tome 1 : Métallurgie Physique, Collection Scientifique ENSAM, 1982.
[10] C. Ouchi, T. Sampei and I. Kozasu, Transactions ISIJ, 22, 1982, 214-222.
[11] W. Steven, A.G. Haynes, Journal of the Iron and Steel Institute, 183, 1956, 349-359.
[12] S.M.C Van Bohemen., Materials Science and Technology 28, 2012, 487-495.
[13] Hong-Seok Yang and H.K.D.H. Bhadeshia, Scripta Materialia 60, 2009, 493–495.
[14] M. SALIB, Étude cinétique et cristallographique de la précipitation de la phase α aux joints de grains β/βdans un alliage de titane, France, 2015.
[15] E. Boucard, Étude de l'influence de l'état métallurgique de l'austénite sur la microstructure de transformation de phase dans les aciers bas carbone , France, 2014.
[16] R. T. Downs; K. L. Bartelmehs; G. V. Gibbs; M. B. Boisen, American Mineralogist 78, 1993, 1104-1107.
[17] G. Cliff and G. W. Lorimer, J. Microsc. 103, 1975, 203-207 .
[18] A. J. Schwartz, M. Kumar, B. L. Adams, D. P. Field, Electron Backscatter Diffraction in Materials Science - Second Edition, Springer, 2009.
[19] C. Maurice, R. Fortunier, , J. Microsc. 230, 2008, 520–529.
[20] http://www.ebsd.com/ebsd-explained/basics-of-automated-indexing
[21] S. Fernandez Bordín, S. Limandri, J.M. Ranalli, G. Castellano, Ultramicroscopy 171, 2016, 177–185.
[22] https://www.oxford-instruments.com/products/microanalysis/ebsd/aztechkl-ebsd-software/ebsd-application-notes
[23] M. Humbert, N. Gey, Journal of Applied Crystallography, 35, 2002, 401-405.
[24] N. Gey, M. Humbert, Journal of Materials Science, 38(6), 2003, 1289-1294.
[25] L. Germain , N. Gey, R. Mercier, P. Blaineau, M. Humbert, Acta Materialia 60, 2012, 4551–4562.
[26] L. Germain, D. Kratsch, M. Salib, N. Gey, Materials Characterization, 2014, 66-72.
[27] M. Humbert, L. Germain, N. Gey & E. Boucard, Acta Materialia 82, 2015, 137–144.
[28] S. Morito, H. Tanaka, R. Konishi, T. Furuhara, T. Maki, Acta Materialia, 51, 2003, 1789-1799.
[29] A.P Hammersley, Model Fitting Within FIT2D, ESRF, BP 220, 38043 Grenoble, France/ http://www.esrf.eu/computing/scientific/FIT2D/MF/model.html
[30] J. Rodríguez-Carvajal, Recent Developments of the Program FULLPROF, in Commission on Powder Diffraction (IUCr). Newsletter , 26, 2001, 12-19.
[31] G.K.Williamson and W.H. Hall, Acta Metall. 1, 1953, 22-31.
[32] G. Dini, R. Ueji, A. Najafizadeh, S.M. Monir-Vaghefi, Materials Science and Engineering A 527, 2010, 2759–2763.
[33] R. E. Smallman & K. H. Westmacott, Philosophical Magazine, 2:17, 1957, 669-683.
[34] S. Takebayashi, T. Kunieda, N. Yoshinaga, K. Ushioda And S. Ogata, ISIJ International, 50, 2010, 875–882.
[35] T. Ungar, G. Ribarik, G. Zilahi, R. Mulay, U. Lienert, L. Balogh, S. Agnew, Acta Materialia 71, 2014, 264–282.

Chapitre III : Analyse microstructurale des Bainites Basse Température et Haute Température

I. La Bainite Basse Température : 103
I.1 Approche classique : localisation des carbures et des joints de lattes 103
I.2 Approche cristallographique par EBSD: 105
I.2.1 Désorientations héritées par la transformation de phase 105
I.2.2 Taille des domaines cristallins versus taille de lattes 108
I. 3 Reconstruction des orientations austénitiques et évaluation de la RO moyenne 110
I. 4 Organisation spatiale des variants: paquet/bloc/sous-bloc 114
I. 5 Comparaison à la Martensite : 116
II. La Bainite Haute Température : 118
II.1 Approche classique : localisation des carbures au sein de lattes 118
II.2 Approche cristallographique par EBSD: 119
II.2.1 Taille des lattes au sens cristallographique 119
II.2.2 Analyse des désorientations entre lattes 122
II.3 Reconstruction des orientations austénitiques et évaluation de la RO moyenne 122
II. 4 Organisation spatiale des variants: paquet/bloc/sous-bloc 123
II.5 Discussion 127
III. Conclusion 129
IV. Références 130

Introduction

Ce chapitre est consacré à la caractérisation des deux microstructures bainitiques de notre nuance de référence **Fe-0.33C-5Ni** (notée **N1**):
- la **Bainite Basse Température (BBT)** et
- la **Bainite Haute Température (BHT).**

Ces microstructures ont été obtenues par transformation isotherme complète à **Ms+15°C** et **Ms+85°C** respectivement, sans maintien de sur-transformation. La structure entièrement martensitique (M) obtenue par trempe simple, est également analysée pour des fins de comparaison à la microstructure BBT. Le tableau ci-dessous reprend les traitements thermiques réalisés dans ce chapitre; Il est extrait du tableau détaillant l'ensemble de la campagne de traitements thermiques (Tab. II.3a - chapitre II).

Echantillons après transformation	Température de transformation	Temps de transformation	Dureté (HV)[6]
BBT	340°C	1700 s	347
M	Trempe		520
BHT	410°C	80 s	302

Tab.III.1 : Traitements thermiques réalisés sur la nuance de référence N1 et dénominations des échantillons correspondants. Les duretés Vickers ont été mesurées à des fins de comparaison.

Nous présentons d'abord les caractéristiques microstructurales de chaque produit de transformation, déduites des observations au MEB : la morphologie, l'arrangement et la taille des carbures et des lattes de ferrite bainitique. Ensuite, les mêmes échantillons sont analysés par EBSD dans le but d'analyser les désorientations de proche en proche au sein de la microstructure, héritage de la transformationdes phases. Les cartographies EBSD sont enfin analysées de façon approfondie avec les logiciels "Merengue 2" et "DECRYPT", pour évaluer la RO et décrire l'organisation topologique des variants cristallographiques en paquet/blocs/sous blocs au sein des PAGs. Notre objectif est de se doter de paramètres microstructuraux et cristallographiques pour distinguer les deux produits de transformation de phase. La méthodologie mise en place sera également appliquée aux structures mixtes analysées au chapitre V, afin d'identifier et de quantifier les fractions des différents produits de transformation présents.

I. La Bainite Basse Température :

I.1 Approche classique : localisation des carbures et des joints de lattes

L'image électronique en SE (cf. Chap.II / § III.1) de la microstructure BBT est présentée par la figure III.1.a. Elle se caractérise par une structure en lattes avec des carbures alignés parallèlement aux joints des lattes (carbures inter-lattes) et précipitant également à l'intérieur des lattes (carbures intra-lattes). Ces derniers s'alignent suivant une direction à 60° des joints de lattes. La figure III.1.b présente un zoom sur une zone de la figure.III.1.a mettant en évidence ces deux types de carbures inter et intra-lattes.

[6] Les mesures de dureté ont été effectuées sur un microduromètre ZwickeRoll/Indentec, à 1/4 de l'épaisseur de l'échantillon pour éviter les hétérogénéités et les défauts au centre et les décarburations aux bords. La valeur indiquée correspond à la moyenne d'une filiation de dix mesures.

Ces observations microstructurales sont cohérentes avec la description classique d'une **bainite inférieure** selon la classification de Mehl [1] (cf. Chap I / § I.1.1).

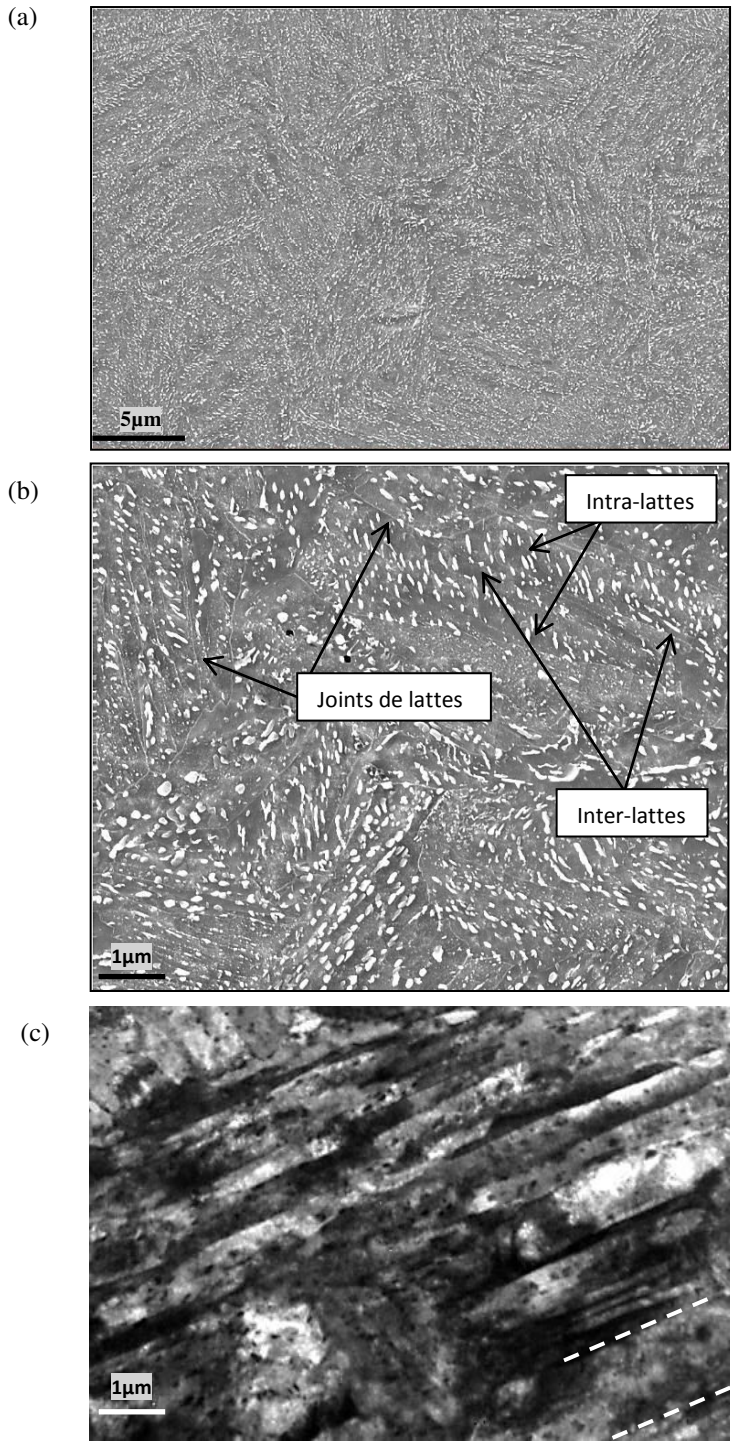


Fig.III.1 : Micrographies MEB en SE montrant (a) la structure en lattes de l'échantillon BBT - Nuance N1 après attaque chimique (b) avec ses arrangements de carbures inter et intra-lattes et (c) micrographie MET en champ clair du même échantillon.

Une première estimation des tailles des lattes et de celle des carbures a été réalisée à partir des images électroniques en MEB. On mesure des largeurs de lattes allant de 300 nm à 900 nm

avec parfois la présence de lattes larges dépassant 1µm. Les largeurs de particules de carbures sont comprises entre 50 et 80 nm avec un rapport de forme de 2.5 à 3.3.

Nous notons que l'imagerie MET ne révèlent pas de lattes plus fines que celles déjà visibles en MEB. La figure III.1.c montre une image en champ clair réalisée sur une lame mince du même échantillon BBT. Elle présente des largeurs variant de 300 à 880 nm, en plus de quelques lattes plus grossières (exemple de la latte délimitée en pointillé sur la figure III.1.c, de largeur >1µm).

I.2 Approche cristallographique par EBSD:

I.2.1 Désorientations héritées par la transformation de phase

L'analyse EBSD a été réalisée sur une cartographie couvrant une zone de 150 µm x 130 µm, avec un pas de 0.1µm. La valeur choisie du pas est en cohérence avec les tailles de lattes mesurées précédemment. La cartographie EBSD a été indexée en ferrite (réseau cubique centré) et acquise en mode résolution angulaire améliorée (cf. Chap. II / § IV.2). Elle ne montre aucune présence d'austénite résiduelle.

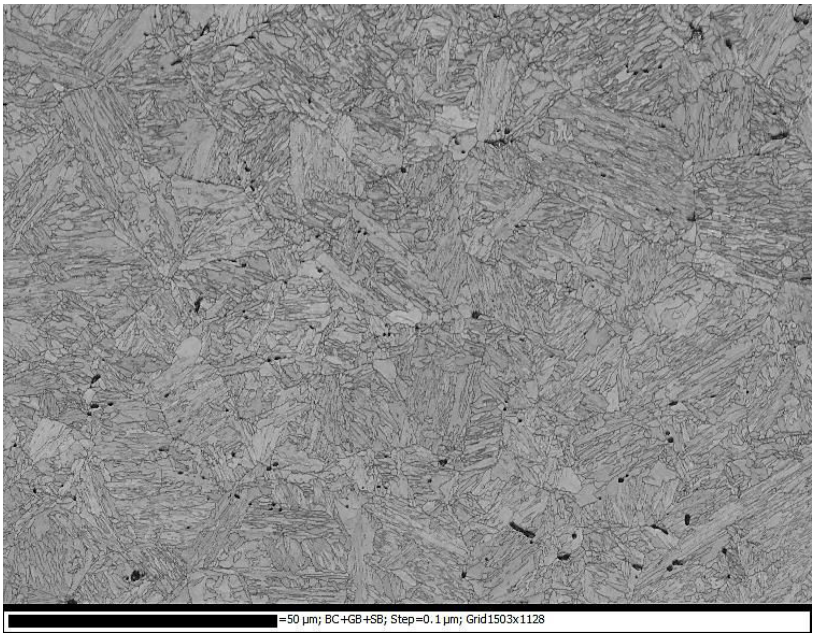
La figure III.2.a et b présente les données EBSD sous la forme de deux cartographies : en contraste de bandes (CB), et en désorientations angulaires (superposées au CB). La figure III.2.c montre l'histogramme de désorientations angulaires de proche en proche, tronqué à 3° de désorientation, associé à ces données EBSD.

L'allure particulière de l'histogramme de désorientations angulaires ne traduit pas une distribution angulaire aléatoire. On peut distinguer trois domaines angulaires, correspondant chacun à une couleur sur la carte EBSD :

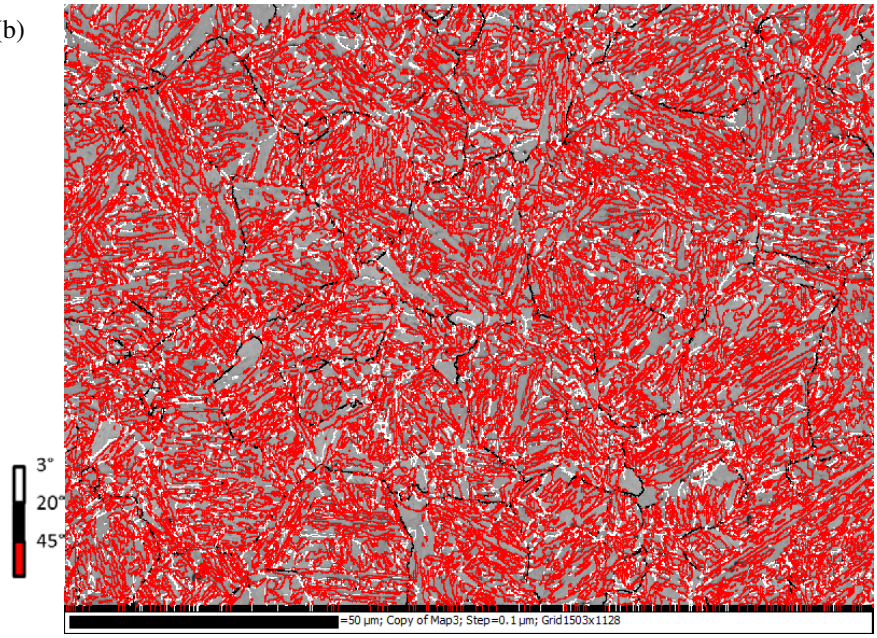
- Le domaine des désorientations fortes > 45° représenté en rouge sur la carte EBSD, caractérisé par un pic important à 60° et un pic moins important, diffus autour de 53°.
- Le domaine des désorientations faibles < 20°, représenté en blanc.
- Le domaine des désorientations intermédiaires comprises entre 20° et 45°, représenté en noir.

Les deux premiers domaines recouvrent classiquement les désorientations théoriques entre variants hérités d'un même grain austénitique selon une RO de type KS ou GT (cf. Chap. I / § II.1.2). Le troisième domaine représente les désorientations entre variants qui sont forcément hérités de deux grains austénitiques différents ; ce sont des désorientations aléatoires qui tracent certains ex-grains austénitiques.
La microstructure observée se caractérise majoritairement par des lattes désorientées à 60°. Par conséquent, elles ont été analysées plus en détail en caractérisant leurs axes de désorientation.
La figure III.3.a montre la projection des axes de désorientation à 60° dans le triangle standard. Cette projection prouve que ces axes ne sont pas des axes <111> comme obtenu avec une RO de KS. En fait, ils correspondent majoritairement à des axes <778> (plus grande densité de projection en rouge Fig.III.3.a), déviés de 3.6° de l'axe <111>. Cependant, on observe une forte dispersion autour de cet axe majoritaire, le long d'un intervalle évoluant de l'axe <111> vers <334>. Le triangle standard de la Fig.III.3.b est donné en complément pour localiser la position de quelques axes de cet intervalle continu, s'étendant sur une ouverture angulaire de 8°. Les mêmes constats ont été tirés dans d'autres travaux antérieurs, notamment ceux d'E. Boucard [1] où les axes de désorientations angulaires de 60° sont dispersés pour la bainite et « ne correspondent plus à un axe unique mais à un étalement allant de l'axe <665> à l'axe <111> » (avec une déviation angulaire de 4.75°).

(a)



(b)



(c)

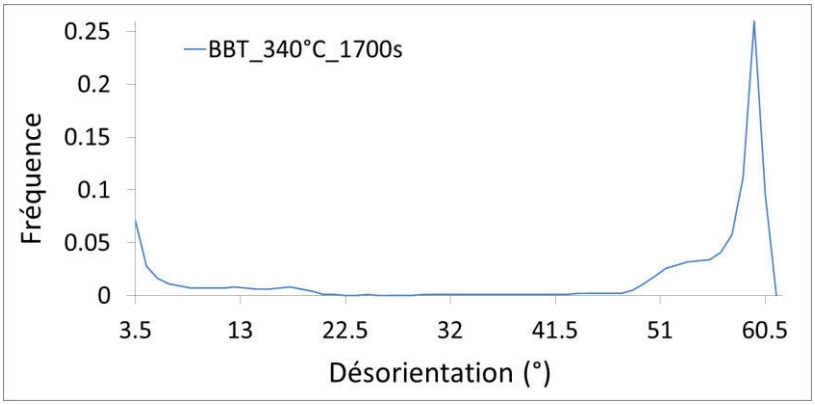


Fig.III.2 : Cartographies EBSD de l'échantillon de BBT (nuance N1) (a) en contraste de bande seul, (b) superposé aux désorientations angulaires, et (c) l'histogramme des désorientations angulaires correspondant.

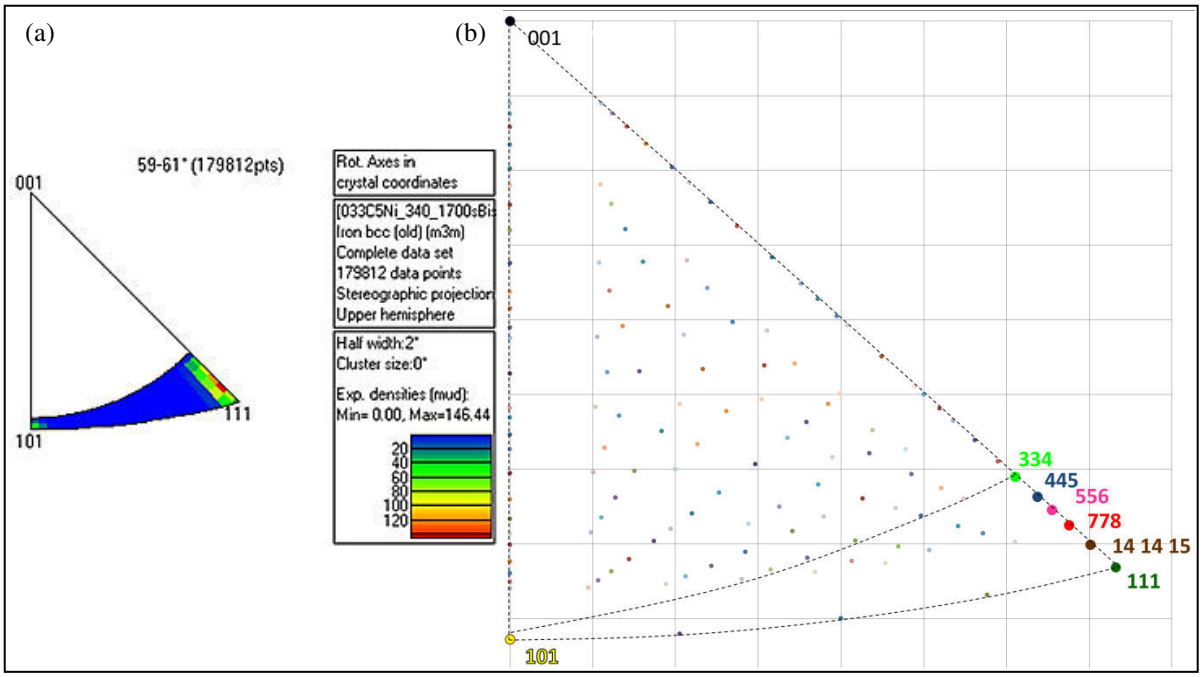


Fig.III.3 : (a) Projection sur le triangle standard des densités d'axes de rotation expérimentaux associées à la carte EBSD de la BBT, correspondant aux angles de désorientation compris entre 59° et 61° et (b) triangle standard montrant les positions de certains axes. *Il est à noter que la désorientation de 60°<334> a un équivalent par symétrie qui correspond à 62.5° autour de <-0.70/0.00/0.713 > (donc à 0.47° de <-101>).*

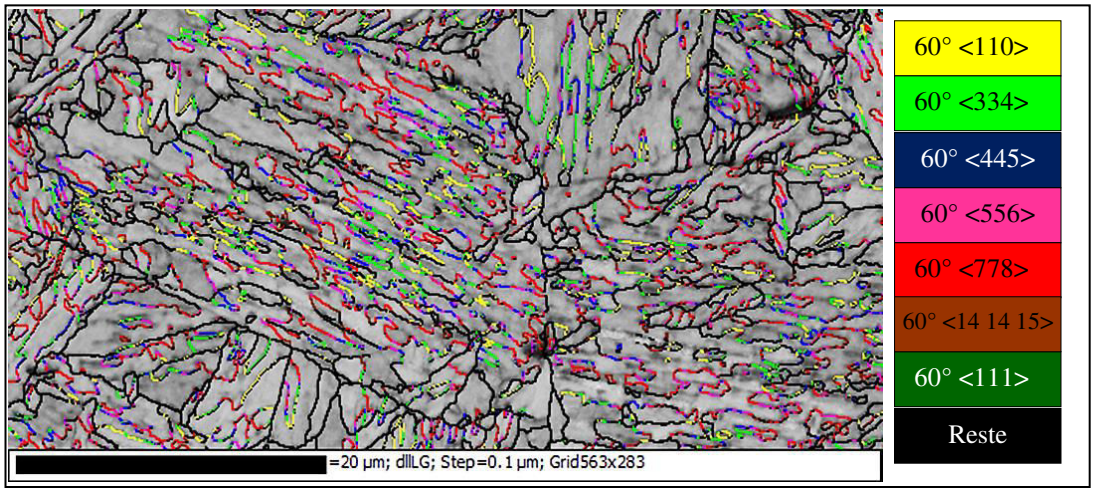


Fig.III.4 : Zoom sur une zone (en haut à droite) de la cartographie EBSD de l'échantillon de BBT (de la figure III.2.b) montrant, les désorientations à 60° associées aux couples angle/axe selon le code de couleurs accompagnant, en attribuant la couleur noire aux joints non spécifiés par ce code et de désorientation>10°.

D'après la cartographie de la figure III.4, les joints à 60° entre deux domaines cristallins (c'est à dire entre deux variants fortement désorientés) ne présentent pas une désorientation unique; Son axe de désorientation évolue de façon continue le long de l'intervalle évoqué plus haut. Dans la plupart des cas, le joint commence à un ex-joint austénitique ou à un joint de paquet, avec un axe <778> (rouge) et subit ensuite une déviation progressive de proche en proche

vers les autres axes. Cette dispersion peut être interprétée comme étant liée à une évolution locale de la RO en cours de transformation [1] ou due à la plasticité de transformation [2] (cf. Chap. I § II.1.5).

I.2.2 Taille des domaines cristallins versus taille de lattes

Après avoir estimé localement les tailles de lattes, à partir de mesures directes sur les images MEB et MET, l'objectif de cette partie est d'exploiter la carte EBSD pour :
-d'une part détecter des domaines cristallins et faire un parallèle entre ces domaines cristallins majoritairement aciculaires et les entités caractérisant les microstructures bainitiques (les lattes de bainite détectées par MEB/MET, les sous-blocs ou blocs).
- et d'autre part quantifier la taille/morphologie moyenne de ces domaines pour dégager un paramètre additionnel, déduit de l'EBSD, permettant de distinguer des produits de transformation.

On rappelle d'abord qu'en EBSD, lorsqu'on identifie des grains (ou plutôt des domaines cristallins), on cherche à identifier un ensemble de pixels qui de proche en proche ont une désorientation angulaire inférieure à une valeur critique θ_c. Des procédures plus avancées (comme ALGRID ou celle référencée dans le logiciel channel 5 sous le nom de 'grain completion') permettent en plus de fragmenter ces domaines primaires (détectés précédemment). A partir d'une ligne 'ouverte' de désorientation, répondant au critère θ_c au sein du domaine primaire, on identifie un contour fermé s'appuyant sur les frontières de ce domaine primaire. Ce contour fermé suit des lignes dont la désorientation évolue de façon décroissante dans l'intervalle [θ_c à θ_{min}] (θ_{min} est alors un 2ème angle à définir dans cette procédure avancée).

Comme nos données EBSD ont été acquises en résolution angulaire améliorée (pour atteindre une résolution de 0.3°), il était intéressant d'évaluer la possibilité de détecter des domaines cristallins qui correspondraient aux lattes (vues au MEB et dont les joints peuvent être révélés en EBSD à haute résolution spatiale par de faible variation du Contraste de Bande). Pour ce faire, nous avons acquis une cartographie complémentaire en résolution spatiale améliorée (comparable à la résolution de l'imagerie MEB ou MET) par TKD (Transmission Kikuchi Diffraction [3] [4]). La figure III. 5 présente ces cartographies réalisées sur une lame mince prélevée par FIB (Focused Ion Beam) sur l'échantillon BBT avec un pas de 20nm. Deux zones en lattes sont imagées respectivement en MEB (BSE haute résolution) sur la lame FIB (Fig.III.5.a) et en MET conventionnelle (Fig.III.5.b), et les cartographies de désorientations associées (en TKD) sont données Figure III.5.c et d. Les figures III.5b et d montrent que certains joints de lattes sont 'très' faiblement désorientés (<1° et jusqu'à des désorientations inférieures à la résolution angulaire des données). Il sera impossible de les identifier par des contours fermés en appliquant un critère de désorientation. Par contre, dans le cas de la BBT, la majorité des lattes observées en imagerie (Fig. III.5a) sont séparées par des joints présentant des désorientations >1° (Fig. III. 5c). Il s'agit en fait d'entités correspondant à des blocs aciculaires qui ne semblent pas majoritairement présenter des lattes faiblement désorientés (la présence de sous-blocs est aussi très minoritaire dans la BBT).

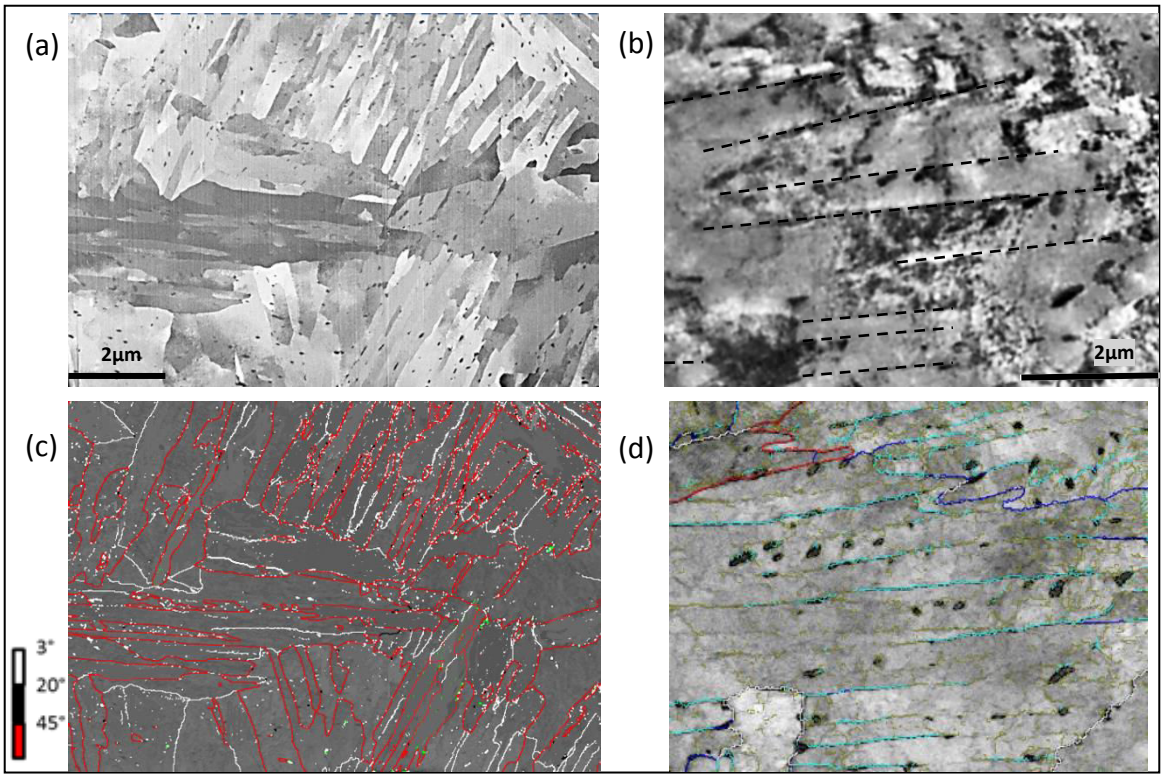


Fig.III.5 : Micrographies de zones en lattes de la BBT (nuance N1) en (a) BSE haute résolution sur la lame FIB et en (b) MET en champ clair sur la lame et leurs cartographies TKD-MEB respectives (c) et (d) (le code de couleur des désorientations angulaires pour la carte (d) est [0.5°-1°] : vert olive; [1°-3°] : bleu clair; [3.°-7°], bleu marine, [7°-20°] : blanc; [20°-45°] : noir; >45° en rouge).

Par conséquent, sur les cartes EBSD de nos échantillons, nous avons identifié des domaines cristallins correspondant majoritairement aux blocs. La routine «grain completion de Channel5» a été utilisée avec les paramètres angulaires [θ_c=6° à θ_{min}=1°]. Le résultat confirme que cette procédure identifie correctement les blocs. Par contre, ces blocs sont de morphologie et de taille très variables si bien qu'une seule moyenne globale de taille ne traduirait pas la complexité de la microstructure.
Nous avons donc distingué trois populations de domaine:
- les plus larges de surface moyenne S>15µm2
- ceux de taille intermédiaire 0.5<S<15µm2
- ceux de très petites tailles S<0.5µm2.

Ces dernières représentent 60% du nombre total de domaines identifiés et couvrent seulement 9% de la carte. Il ne s'agit pas d'erreurs d'indexation. Ils correspondent plutôt à des fragments de domaines aciculaires, probablement connectés à un domaine voisin en 3D (ou qui y serait connecté en 2D avec une meilleure résolution spatiale de la carte EBSD). Dans tous les cas, nous avons considéré qu'ils n'étaient pas représentatifs de cette microstructure aciculaire particulièrement complexe. Par conséquent, dans toute la suite du chapitre, des domaines de ce type ne seront jamais intégrés à nos statistiques.

Par ailleurs, pour quantifier la taille et la morphologie des domaines, nous avons considéré les diamètres de cercles équivalents (DCE) et le ratio d'aspect R. A partir de R et de la surface moyenne du domaine, nous avons aussi calculé la largeur moyenne des domaines aciculaires à

partir du petit axe d'ellipse équivalente (on parlera de largeur de lattes au sens cristallographique). Ces considérations sont valables pour tous les prochains calculs de taille.

Le résultat de notre analyse statistique pour la BBT est donné Fig. III.6, en représentant par des couleurs aléatoires les domaines identifiés et en distinguant les populations de blocs ayant une surface $0.5\mu m^2<S<15\mu m^2$ (a) et ceux ayant une surface $S>15\mu m^2$ (b) (le fond de la carte est coloré en niveau de gris selon le Band Slope - paramètre ici plus efficace que le CB pour révéler la microstructure).
Les blocs de la BBT sont majoritairement de petites tailles ($<15\mu m^2$ - figure III.6a) avec des morphologies aciculaires correspondant à des largeurs de lattes (au sens cristallographique) de 1µm (on retrouve ainsi l'ordre de grandeur des lattes les plus larges vu au MEB). Ils forment de fortes désorientations au sein de blocs plus larges, aux formes complexes et couvrant 29% de la surface (figure III.6b).

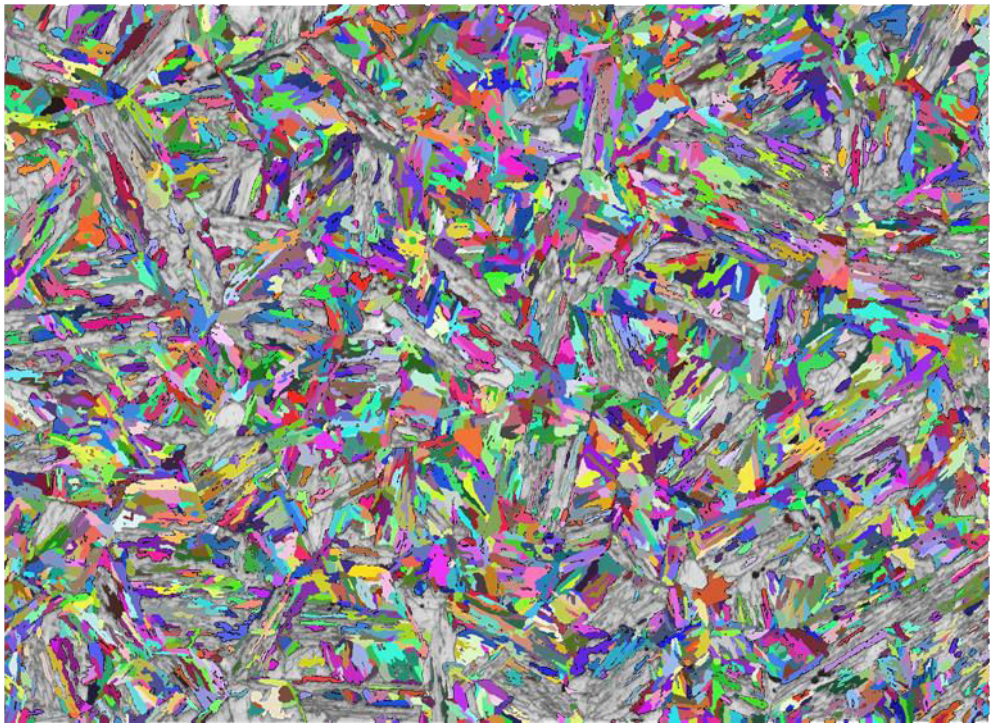
Cette analyse traduit la complexité de la microstructure BBT et les difficultés de la quantifier à partir de critères de désorientations. Les outils de reconstruction couplés à l'analyse avec Decrypt doivent permettre d'aller plus loin en exploitant les RO héritées entre variants dans la quantification de la microstructure en paquets/blocs et sous-blocs.

I. 3 Reconstruction des orientations austénitiques et évaluation de la RO moyenne

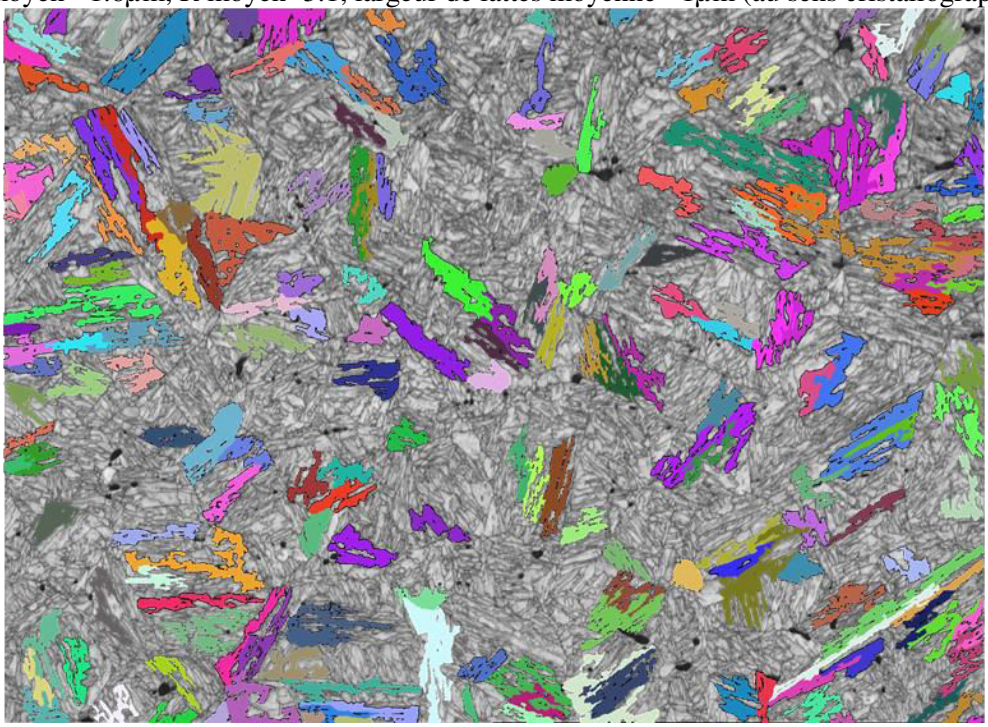
L'arrangement spatial des orientations des lattes résulte du mécanisme de transformation des grains austénitiques en respectant une relation d'orientation entre les réseaux des deux phases. Donc, la structure austénitique mère et la RO sont des éléments essentiels pour pousser l'analyse du produit isotherme qui est la BBT.

Ainsi, les mêmes données EBSD présentées figure III.2, ont été analysées avec le logiciel MERENGUE 2 selon la méthodologie décrite au Chap.II / § III.V. Pour rappel, MERENGUE exploite la cartographie EBSD de la matrice ferritique fille pour reconstruire la cartographie de l'austénite mère et pour évaluer la RO moyenne entre les deux phases.
La carte ferritique de départ, après identification des domaines cristallins par ALGRID (X_{max}=3° et X_{min}=0.5°) est donnée figure III.7a. Elle montre des domaines en lattes -au sens cristallographique - colorés aléatoirement.

La carte austénitique reconstruite est présentée figure III.7.b. Un taux de reconstruction « fiable » proche de 100% a été obtenu. Les joints de macles austénitiques sont particulièrement difficiles à localiser et peuvent présenter quelques erreurs. Ils sont colorés en rouge et seront considérés comme des joints de PAG dans l'analyse statistique à venir. On rappelle, qu'après cette étape de reconstruction, Merengue 2 (et par la suite Decrypt) aura associé à chaque domaine cristallin identifié par ALGRID, l'un des 24 variants (des regroupements pourront ensuite être fait de proche en proche pour identifier les blocs et les sous-blocs).



(a) Blocs ayant une surface 0.5µm2<S<15µm2
65% de la surface et 37% en nombre
DCEmoyen =1.6µm, R moyen=3.1, largeur de lattes moyenne =1µm (au sens cristallographique)



(b) Blocs ayant une surface S>15µm2
29% de la surface et 1.6% en nombre
DCEmoyen =6.0µm, R moyen=3.1, largeur de lattes moyenne =3.5µm (au sens cristallographique)

Fig. III.6: Echantillon BBT - Nuance 1: Identification des domaines cristallins correspondant aux Blocs et répartis en deux classes avec les statistiques associées
a) Blocs ayant une surface 0.5µm2<S<15µm2, (b) Blocs ayant une surface S>15µm2.

La RO calculée par Merengue 2 est définie par les trois angles d'Euler (3.3°, 46°, 6.6°). La figure III.7.c montre qu'elle est très déviée par rapport à KS. On note les écarts suivants entre les plans : (110)α^(111)γ = 0,98° et entre les directions : [1-11]α^[1-10]γ = 2,78°.

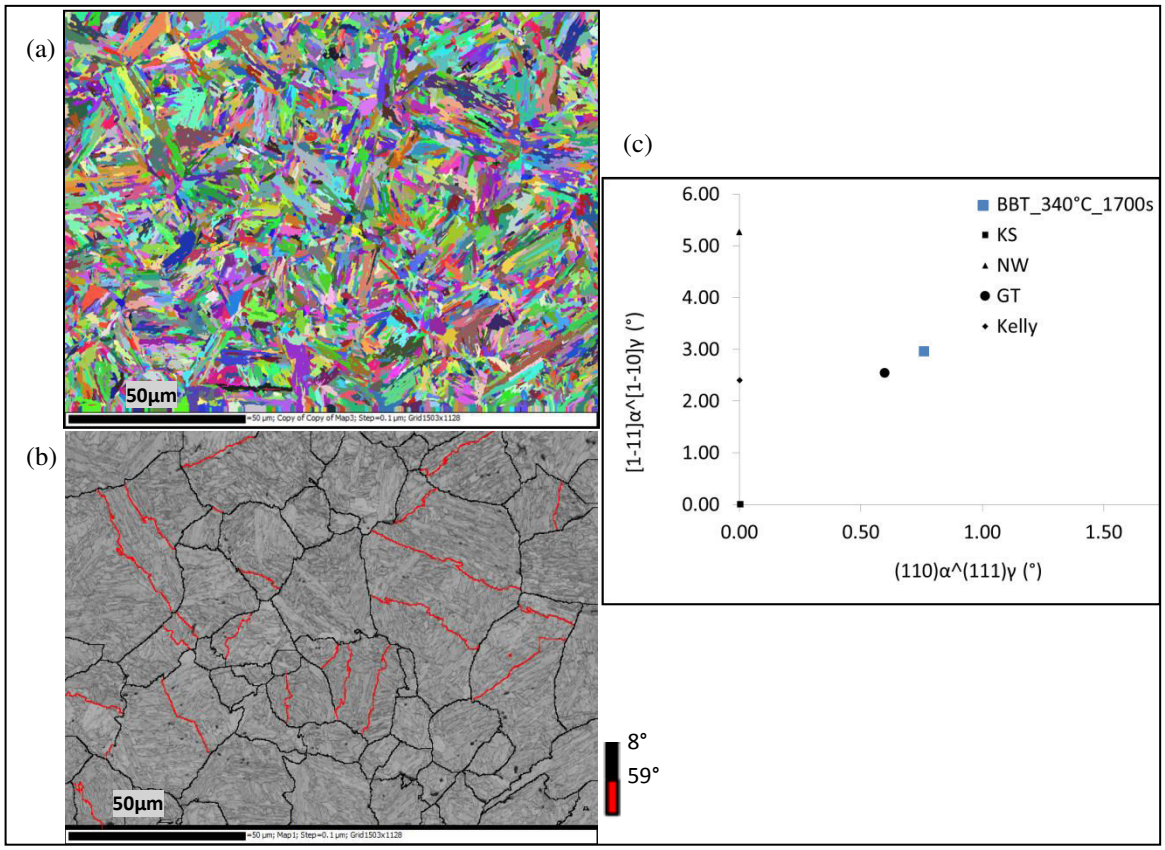


Fig.III.7 : (a) Carte de la ferrite de la BBT - nuance N1 et (b) la carte austénitique reconstruite associée montrant les joints de grains en noir et les joints de macle en rouge, superposés au CB (c) Relation d'orientation calculée et repérée par rapport à sa déviation angulaire de la relation de KS (les RO classiquement observées pour les aciers sont aussi représentées).

Les 24 variants théoriques hérités en respectant cette RO et leurs désorientations strictes sont présentés dans le tableau Tab.III.2. Ils sont classés par un groupement partageant le même plan dense de l'austénite et qui représente un paquet de lattes (CPP - Close Packed Plane). Les désorientations du tableau sont toutes calculées par rapport à V1. Au sein d'un même paquet (V1-V6), on note les désorientations théoriques suivantes :
- entre blocs : 60°<110>, 60°<445> et 55°<110>,
- entre sous-blocs : 4.7°<340>.

Les désorientations restantes du tableau (V1/V7 → V1/V24) définissent les désorientations théoriques possibles entre les paquets. Bien sur, la RO moyenne, déduite de MERENGUE2 pour optimiser la reconstruction, ne permet pas de traduire la dispersion autour de l'axe proche <111> mise en évidence expérimentalement.

	CPP / CPD	Désorientation	Axe	Offset
P1	(110)α^(111)γ = 0,98°			
V1 B1	[-1-11]α^[-101]γ = 2,78°			
V2 B2	[-11-1]α^[-101]γ = 2,78°	60.018	-1-10	1.315
V3 B3	[-1-11]α^[01-1]γ = 2,78°	60.017	110	1.315
V4 B1	[-11-1]α^[01-1]γ = 2,78°	4.713	-3-40	0.2
V5 B3	[-1-11]α^[1-10]γ = 2,78°	60.264	5-44	0.937
V6 B2	[-11-1]α^[1-10]γ = 2,78°	55.348	110	2.15
P2	(110)α^(1-11)γ = 0,98°			
V7 B3	[-1-11]α^[10-1]γ = 2,78°	56.057	3-13	1.553
V8 B1	[-11-1]α^[10-1]γ = 2,78°	18.259	-10-6	2.469
V9 B2	[-1-11]α^[-1-10]γ = 2,78°	52.498	-313	2.543
V10 B1	[-11-1]α^[-1-10]γ = 2,78°	18.515	0-1-4	0.947
V11 B3	[-1-11]α^[011]γ = 2,78°	51.562	5-25	1.582
V12 B2	[-11-1]α^[011]γ = 2,78°	57.222	-414	2.749
P3	(110)α^(-111)γ = 0,98°			
V13 B1	[-1-11]α^[0-11]γ = 2,78°	10.285	-14-4	0.349
V14 B3	[-11-1]α^[0-11]γ = 2,78°	57.222	-4-41	2.874
V15 B2	[-1-11]α^[-10-1]γ = 2,78°	50.988	-645	0.477
V16 B2	[-11-1]α^[-10-1]γ = 2,78°	50.968	6-56	0.061
V17 B1	[-1-11]α^[110]γ = 2,78°	13.085	0-5-3	3.306
V18 B3	[-11-1]α^[110]γ = 2,78°	52.498	331	2.543
P4	(110)α^(11-1)γ = 0,98°			
V19 B2	[-1-11]α^[-110]γ = 2,78°	56.095	-3-31	1.553
V20 B1	[-11-1]α^[-110]γ = 2,78°	13.085	03-5	3.456
V21 B3	[-1-11]α^[0-1-1]γ = 2,78°	51.118	-535	0.652
V22 B1	[-11-1]α^[-1-10]γ = 2,78°	15.799	-1-3-3	1.515
V23 B3	[-1-11]α^[101]γ = 2,78°	50.988	5-46	0.409
V24 B2	[-11-1]α^[101]γ = 2,78°	51.561	552	1.581

Tab.III.2 : Les 24 variants théoriques induits par la RO calculée par reconstruction MERENGUE2 pour l'échantillon BBT - Nuance 1, classés par paquets (CPP) P1 à P4 et précisant les désorientations spécifiques (angles et axes) qui en découlent.

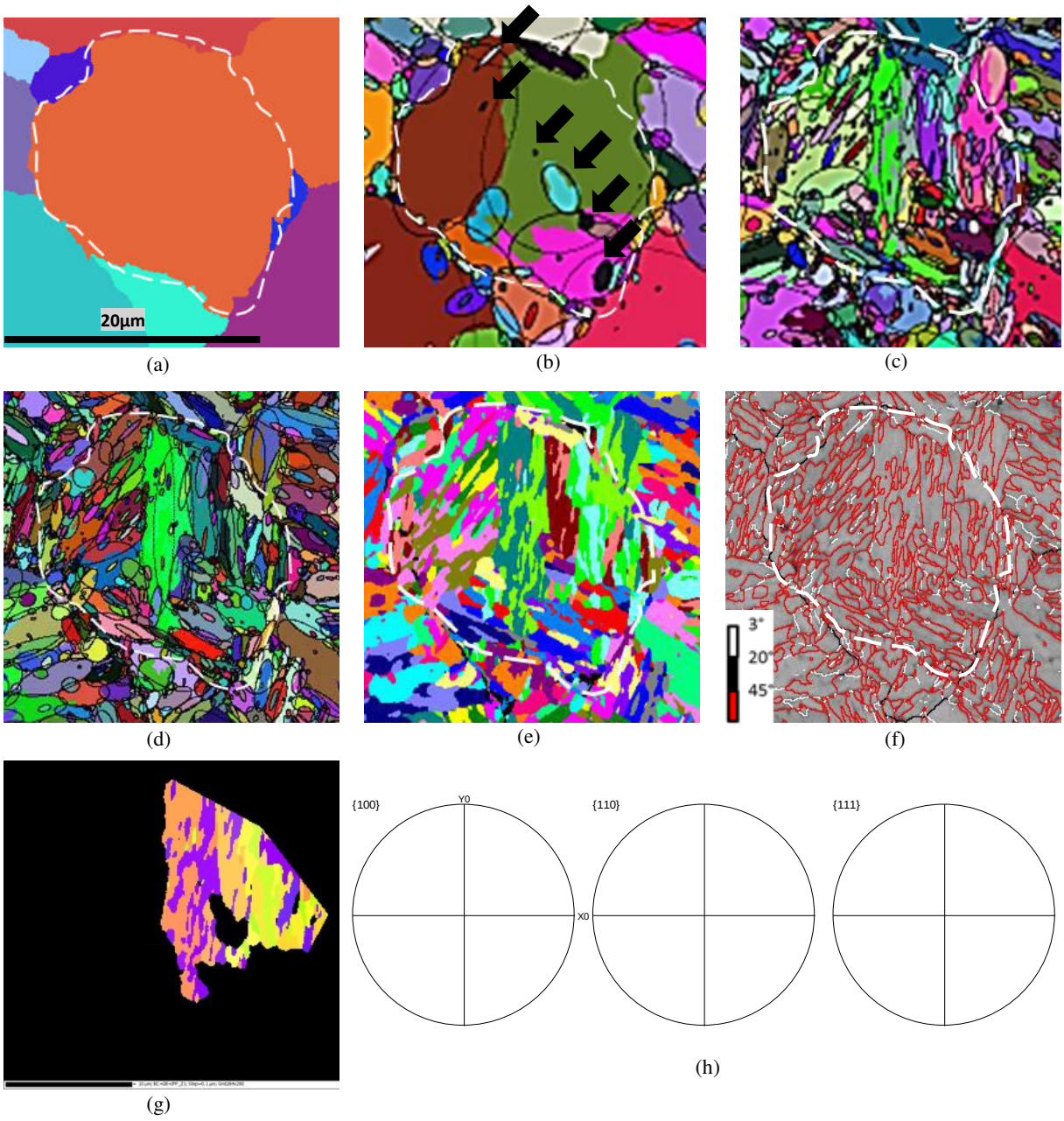
Les faibles désorientations entre les sous-blocs (définies théoriquement par 4.7°<340>) sont plutôt décrites sur la cartographie EBSD expérimentale, par un ensemble de couples angle/axe plus étendu, qui comprend des désorientations angulaires jusqu'à 3° (voir inférieures). Cependant leur fraction est faible car la majorité des blocs ne contient pas de sous-blocs.

I. 4 Organisation spatiale des variants: paquet/bloc/sous-bloc

Pour mieux comprendre la microstructure bainitique BBT, si complexe, nous avons procédé par une analyse numérique complémentaire à celle de MERENGUE2, et qui permet à la fois, de visualiser l'organisation spatiale des variants (V1 à V24) au sein des grains parents et de quantifier leur répartition en paquet/bloc/sous-bloc. L'analyse est réalisée à l'aide du logiciel Decrypt selon la méthode décrite au chapitre II / § V.3.

Ce type d'analyse est d'abord illustré figure III.8, en ne considérant qu'un seul grain parent (Fig. III. 8a) extrait de la carte reconstruite (Fig. III. 7b). Il a un diamètre équivalent de 20µm. Il est divisé en trois paquets de taille significative (colorés en marron, vert et rose sur la figure III.8.b). Cependant, on observe aussi la présence de petits paquets. En fait, il s'agit de blocs /sous-blocs émergeant en 2D au sein d'un large paquet avec lequel il n'est pas compatible cristallographiquement. En 3D, ces entités sont liées cristallographiquement à un autre paquet, visible ou non dans notre section d'analyse). Aussi pour l'analyse statistique à venir (concernant la répartition des blocs/sous-blocs par paquet), nous avons travaillé que sur les paquets les plus larges sur notre section d'observation (ceux ayant un DCE> 5µm).
Focalisons-nous sur le paquet vert isolé Fig. III.8.g et les orientations correspondantes données sous forme de projection stéréographique Fig. III.8.h. On confirme bien que l'ensemble des domaines cristallins de ce paquet partage un pôle commun <110>α (parallèle au pôle <111>γ définissant ce paquet).
Figure III.8.c, le paquet vert est subdivisé en plusieurs blocs (on identifie 15 blocs, certains pouvant être connecté en 3D). Cette subdivision reste inchangée au sein de ce même paquet, lorsque nous passons à la cartographie de sous-blocs de la figure III.8.d. Ceci montre que ce paquet en particulier, est libre de joints de sous-blocs (autrement dit, le nombre de blocs=le nombre de sous-blocs). Effectivement, on ne retrouve que des fortes désorientations (majoritairement 60° et moins fréquemment 55°) traçant les joints des différents domaines existants dans ce paquet, comme montré par la carte EBSD de désorientation angulaire (Fig.III.8.e).

Cette méthodologie, décrite en détail sur un grain, permet donc d'analyser efficacement l'organisation topologique des variants et peut être appliquée sur l'ensemble de la carte EBSD (avec les mêmes critères) pour dégager des données statistiques.
La figure III.9 montre les arrangements au sein de la microstructure à différents niveaux. Elle présente des PAGs (Fig.III.9.a) de diamètre moyen égal à 17.5µm. Ces PAGs sont divisés en paquets (Fig.III.9.b) de taille moyenne de 9µm.



(a) (b) (c)

(d) (e) (f)

(g) (h)

Fig.III.8 : Images issues de l'analyse Decrypt appliquée à un PAG de l'échantillon BBT - Nuance N1 (a) montrant sa subdivision en (b) paquets, (c) blocs, (d) sous-blocs selon un code de couleur aléatoire par élément identifié, et (e) la distribution des variants selon un code attribuant une couleur par variant au sein du même grain. Cartographies EBSD (f) des désorientations de la même zone et (g) Sélection d'un paquet (code de couleur de l'IPF//Z) accompagnée de (h) des projections stéréographiques des normales aux plans {100}, {110} et {111}.

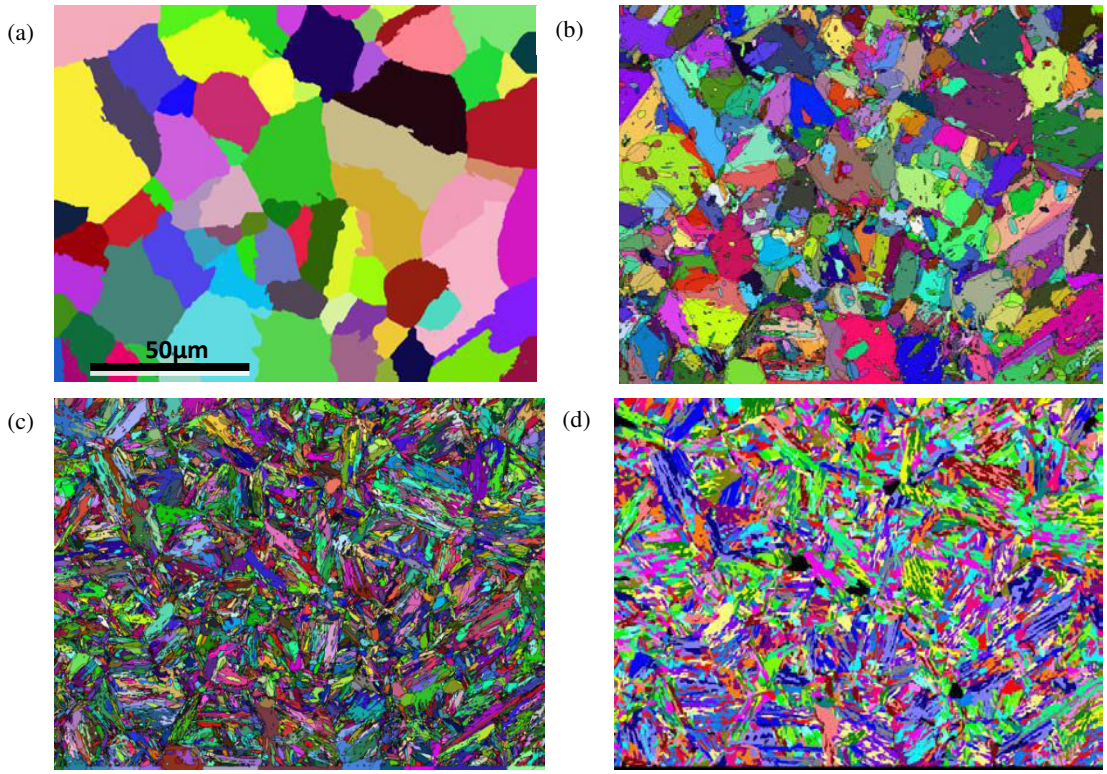


Fig.III.9 : (a) Cartographie de l'austénite reconstruite de la BBT (nuance N1) affectant à chaque grain son orientation moyenne et cartographies Decrypt des (b) paquets et des (c) blocs en code de couleur arbitraire et (d) cartographie des variants attribuant une couleur par variant au sein du même grain.

L'analyse statistique des résultats fournis pour toute la carte EBSD pour la BBT, donne un nombre moyen de paquets de 4 par PAG et de taille moyenne 9µm (en DCE). Elle montre aussi que 99% de ces paquets contiennent un nombre de blocs largement supérieur à 4 (en moyenne 21 blocs par paquet). Ces blocs sont rarement subdivisés en sous-blocs.

I. 5 Comparaison à la Martensite :

La même démarche adoptée dans les paragraphes précédents a été appliquée à la microstructure M. Elle montre que pour la nuance N1, la cristallographie de la martensite ressemble beaucoup à celle de la bainite à basse température BBT.

La Fig.III.10 montre la cartographie visualisant les désorientations angulaires de la martensite (Fig.III.10.a) et l'histogramme associé (Fig.III.10.b). Tout comme pour la BBT, l'allure de l'histogramme des désorientations de la martensite se caractérise par un pic important à 60° et par un pic moins important et plus « étalé » autour de 53°. Par ailleurs, la nature des joints de blocs fortement désorientés de la martensite rejoint la description ; l'axe majoritaire n'est pas le <111> pour les désorientations de 60°, mettant en évidence la même dispersion observée pour la BBT.

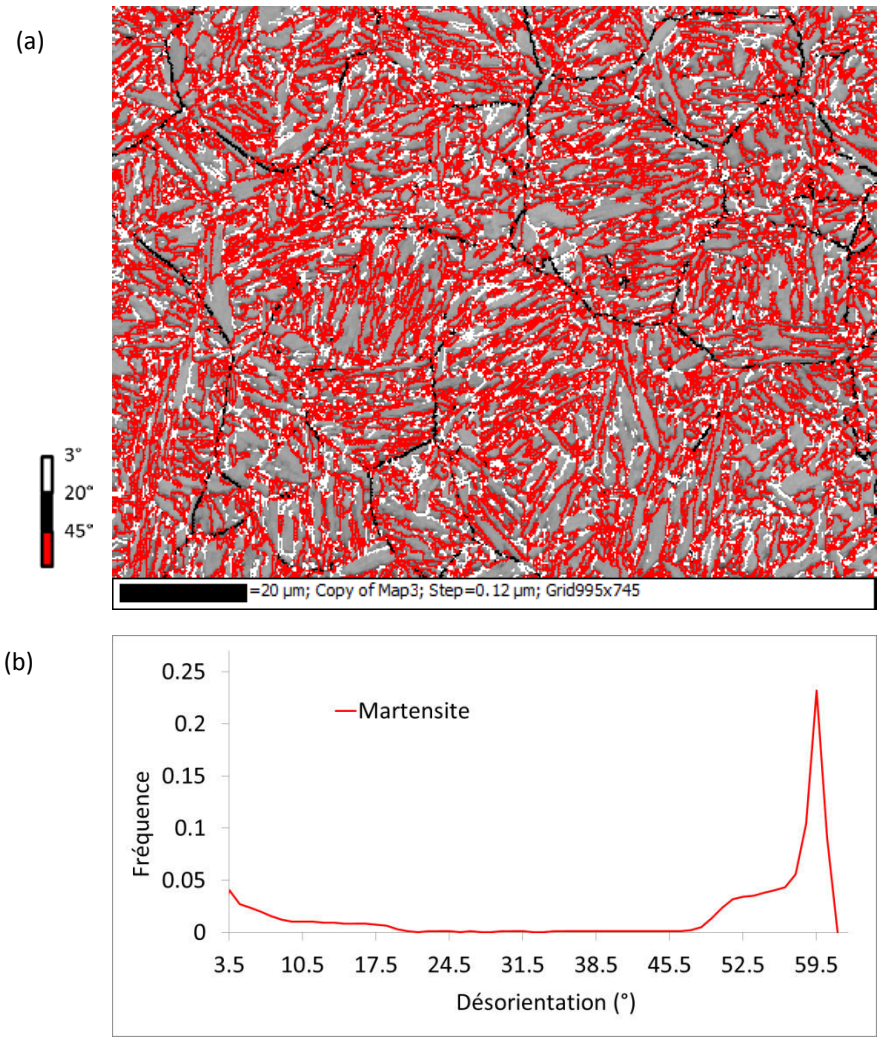


Fig.III.10 : Cartographie EBSD des désorientations angulaires de la martensite M (a) et l'histogramme angulaire associé (b) pour la nuance N1

Dans la Fig.III.11.a/b, nous présentons la carte de la structure austénitique mère reconstruite par Merengue2 de la martensite M (on note qu'un nombre limité de joints de macle sont mal reconstruits) et nous repérons la RO correspondante par rapport à sa déviation angulaire de la relation de KS. La RO moyenne calculée par Merengue 2 est définie par les angles d'Euler (3°, 45.8°, 6.8°); Cela correspond à un écart entre les plans (110)α//(111)γ de 0.94° et entre les directions [1-11]α//[1-10]γ de 3.02°). Cette RO est presque confondue avec celle calculée pour la BBT, et elle engendre les mêmes désorientations spécifiques (Angle/Axe) entre les 24 variants théoriques possibles, présentées par le tableau III.3.

Les arrangements en paquets et en blocs des lattes sont donnés par le calcul Decrypt et présentés par la figure III.11.c, d et e. Les PAGs font 17.75µm de taille moyenne, avec considération des macles et sont divisés en paquets de 9,9µm. Le nombre moyen de paquets par PAG est aussi de 4 comme pour la BBT. Tous les paquets sont divisés en nombres de blocs largement supérieurs à 4.

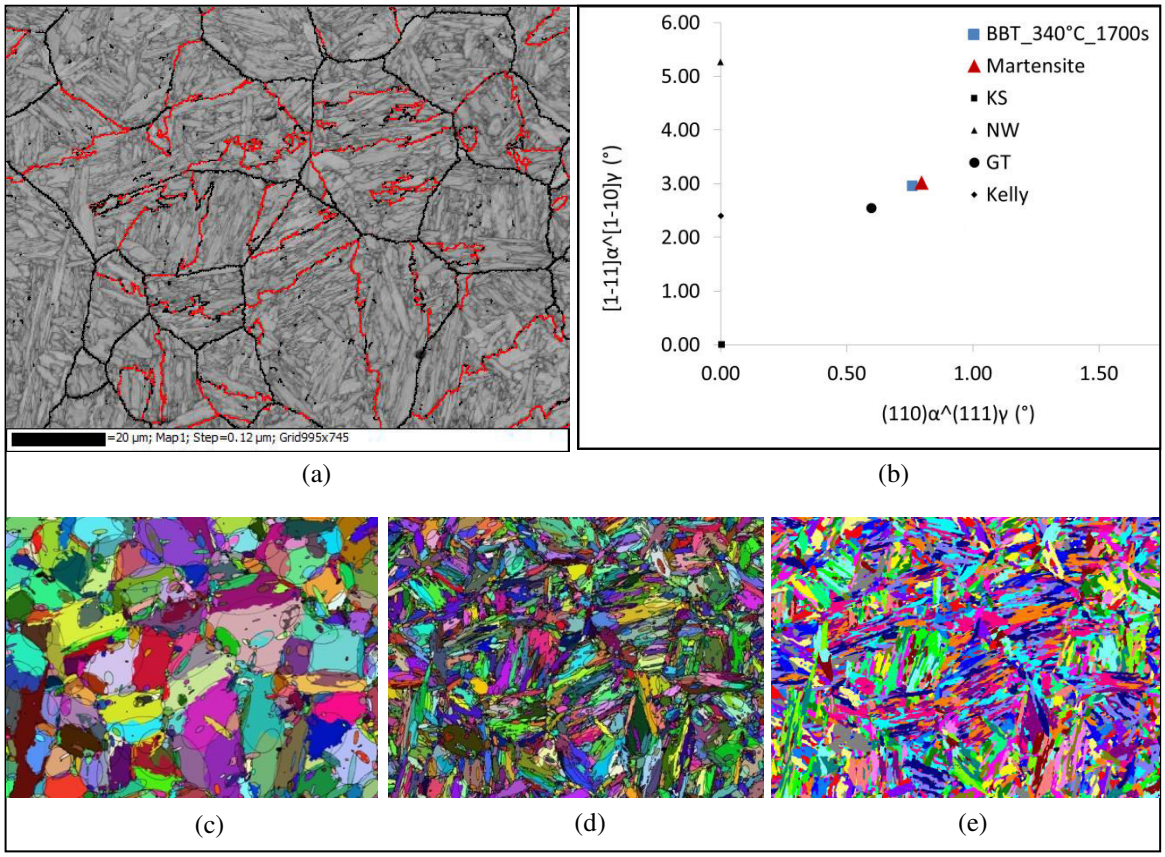


Fig.III.11 : (a) Carte austénitique reconstruite associée à l'échantillon M montrant les joints de grains en noir et les joints de macle en rouge, superposés au CB (b) Relation d'orientation calculée et repéré par rapport à sa déviation angulaire de la relation de KS (les RO classiquement observées pour les aciers sont aussi représentées). Cartographies Decrypt des (c) paquets et des (d) blocs en code de couleur arbitraire et (e) cartographie des variants/souc-blocs attribuant une couleur par variant au sein du même grain.

II. La Bainite Haute Température :

II.1 Approche classique : localisation des carbures au sein de lattes

L'échantillon BHT a été transformé par maintien isotherme à Ms+85°C (=410°C) pendant 80s, temps nécessaire pour avoir une transformation à 95%. On note la présence d'îlots MA dans la microstructure à température ambiante (couvrant ~5% en surface).

L'observation des carbures au MEB de la figure III.12 montre la présence, à la fois de zones contenant seulement des carbures inter-lattes, et d'autres contenant aussi bien des carbures inter-lattes qu'intra-lattes. Cette BHT semble à priori être un mélange de bainites inférieure et supérieure, définies selon la classification de Mehl (cf. Chap I / § I.1.1).

Concernant la taille des lattes, nous nous sommes attendus à trouver des espacements plus importants entre les lattes de BHT que ceux de la BBT, étant donné la température de transformation plus élevée. Cependant, les mesures directes des distances sur les images électroniques ont donné les mêmes ordres de grandeurs observés au paragraphe II.1 ; e.i. des largeurs de lattes variant de 300 nm à 900 nm, avec la présence parfois de lattes > 1µm. Pour les carbures, nous mesurons des largeurs de particules comprises entre 50 et 80 nm avec un aspect ratio allant de 2. à 2.5 pour les intra-lattes, et proche de 3.3 à 5 pour les inter-lattes.

(a) (b)

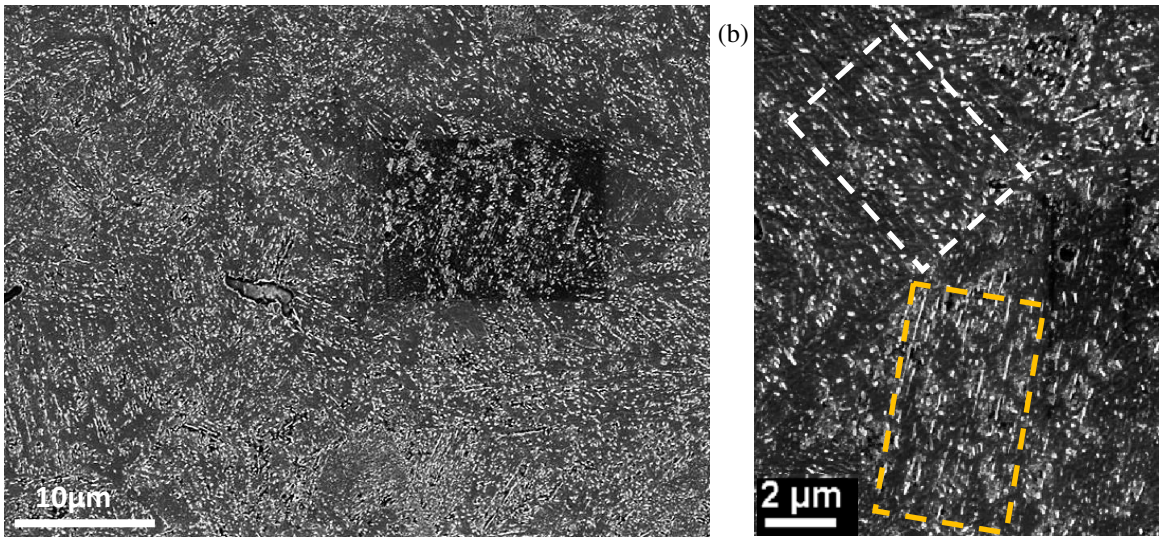


Fig.III.12 : Micrographies MEB (en InLens) montrant (a) la structure en lattes de la BHT de la nuance N1 où on observe (b) deux types de zones : des zones à carbures uniquement inter-lattes (cadre pointillé jaune) et d'autres à carbures inter et intra-lattes (cadre pointillé blanc)

II.2 Approche cristallographique par EBSD:

II.2.1 Taille des lattes au sens cristallographique

La figure III.13.a montre la superposition de la cartographie EBSD en contraste de bande de la BHT et de la cartographie en désorientations angulaires. La microtexture se caractérise par :

- De larges domaines cristallins de morphologie polygonale (un exemple est encadré en noir figure III.13a et est pointé par des flèches en 13.b). Ces domaines sont fortement désorientés par rapport à leur voisinage (joints rouges ou noirs). Ils contiennent souvent des lattes (au sens morphologique) fines très faiblement désorientées (de moins de 3°) et dont les joints sont bien révélés par les variations du contraste de bandes. Par contre, certains ne présentent plus de lattes visibles par les variations du contraste de bande mais uniquement des sous-joints.
- Des domaines cristallins plus fins de morphologie aciculaire, fortement désorientés par rapport à leur voisinage (joints rouges) (zones encadrées en jaune dans la figure III.13.a).

Les joints entre sous-blocs, correspondant à des désorientations angulaires de 5° environ (cette valeur sera en fait donnée dans la section suivante après identification de la RO moyenne par Merengue 2) sont rarement des joints continus de 5°. L'analyse de la carte EBSD montre en effet que seulement une partie d'un sous-joint au sein d'un domaine cristallin plus large présente cette désorientation. Le joint progresse ensuite avec des désorientations plus faibles (jusqu'à la limite de la résolution angulaire des données EBSD). Il est donc aussi difficile d'identifier des sous-blocs par une procédure EBSD de détection de grain.

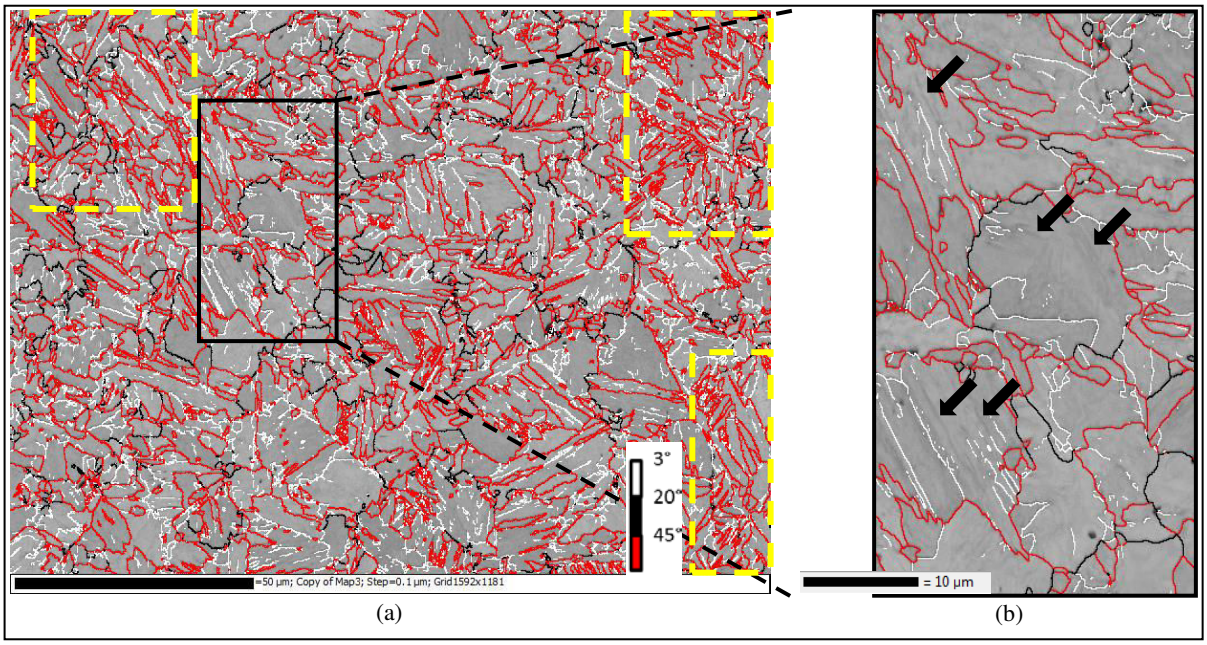
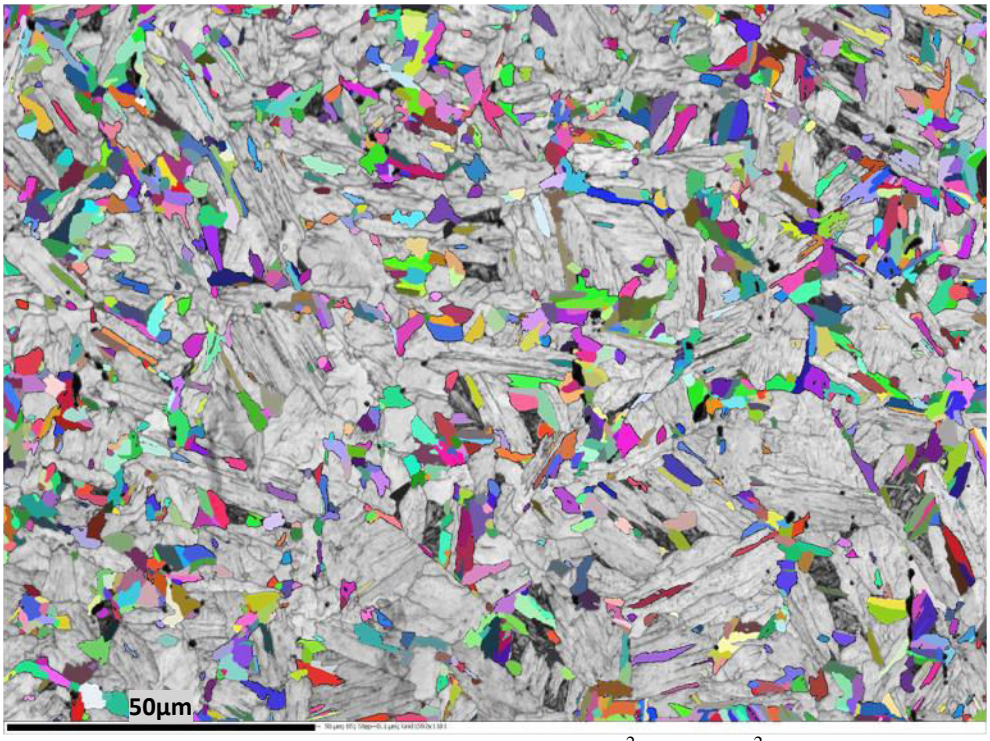


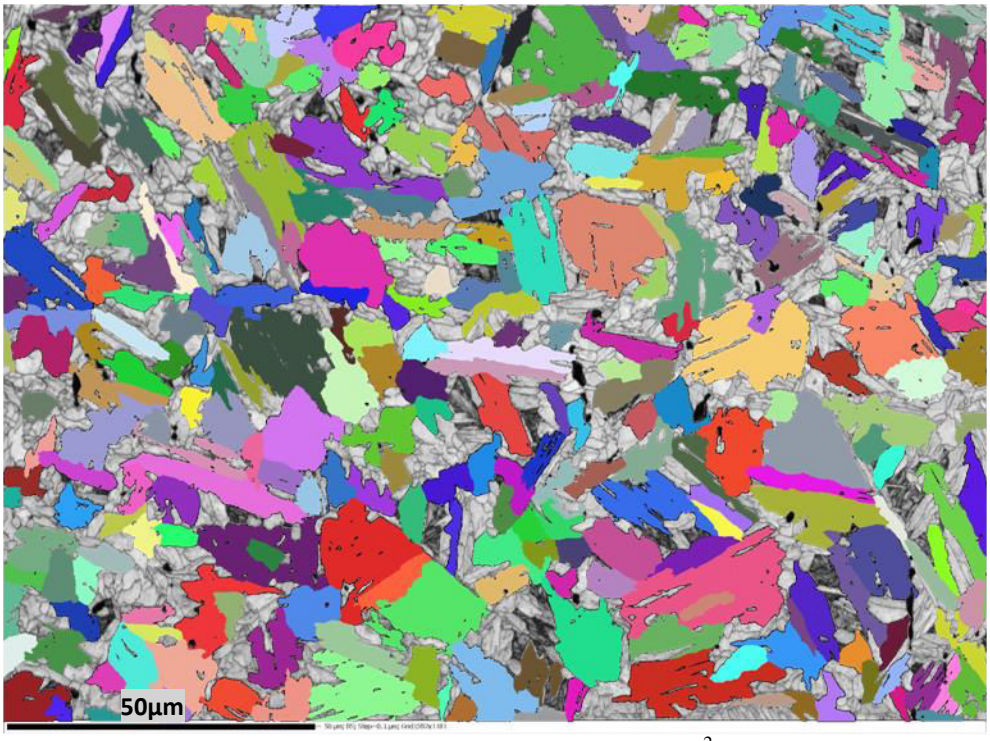
Fig.III.13 : Cartographies EBSD de désorientations angulaires BHT de la nuance N1 montrant (a) la mixité de la microtexture associée entre des zones de blocs fins fortement désorientés (cadres jaunes) et des zones plus grossières (paquets et gros blocs) contenant des lattes faiblement désorientées (cadres noirs) + (b) zoom sur ces domaines.

En conservant les mêmes critères de détection des domaines cristallins que pour la BBT (donc pour la détection des blocs), on obtient le résultat synthétisé figure III.14 (les mesures sur les îlots MA n'ont pas été prises en compte, tout comme les plus petits domaines de surface $s<0.5\mu m^2$ représentant ici 1% de la surface totale). Cette figure représente à nouveau par des couleurs aléatoires les domaines identifiés, en distinguant les populations de blocs ayant une surface $0.5\mu m^2<S<15\mu m^2$ (a) et ceux ayant une surface $S>15\mu m^2$ (b) (le fond de la carte est coloré en niveau de gris selon le Band Slope - paramètre ici plus efficace que le CB pour révéler la microstructure).

Les paramètres qui quantifient la microstructure traduisent bien les différences entre la BBT et BHT. En effet, à présent pour la BHT, 65% de la carte est couverte par les blocs les plus larges aux formes plus polygonale et de diamètre équivalent 7.2µm (figure III.14.b). Leur rapport d'aspect moyen est de 2.6, ce qui conduit à une largeur de lattes de 4µm. Les blocs de petites surface ($<15\mu m^2$ - figure III.14.a) couvrent 35% de la surface. Ils ont un diamètre équivalent de 2µm. Certains ont encore des morphologies bien aciculaires. En moyenne, sur l'ensemble de cette sous-population, la largeur de lattes est de 1.3µm (au sens cristallographique).



(a) Blocs ayant une surface $0.5\mu m^2<S<15\mu m^2$
34% de la surface et 45.6% en nombre
DCEmoyen =2.0µm, R moyen=2.7, largeur de lattes moyenne =1.3µm (au sens cristallographique)



(b) Blocs ayant une surface $S>15\mu m^2$
65% de la surface et 9% en nombre
DCEmoyen =7.2µm, R moyen=2.6, largeur de lattes moyenne =4.8µm (au sens cristallographique)

Fig. III.14: Echantillon BHT - Nuance 1: Identification des domaines cristallins correspondant aux Blocs répartis en deux classes avec les statistiques associées
(a) Blocs ayant une surface 0.5µm2<S<15µm2, (b) Blocs ayant une surface S>15µm2.

II.2.2 Analyse des désorientations entre lattes

L'histogramme des désorientations angulaires de la BHT montré par la figure III.15, présente les pics caractéristiques correspondant aux désorientations spécifiques entre les blocs et les paquets. Cependant, comparé à l'histogramme de la BBT (ou de la M), nous remarquons une diminution importante (de 50%) du pic à 60° pour la BHT. Cette diminution est associée à la plus faible proportion des joints de blocs (en rouge sur la carte EBSD Fig.III.13.a), comparée à celle de la structure de la BBT.

Nous notons, encore pour cette microstructure, que les joints à 60° ne sont pas exactement autour de l'axe <111>. Mais la dispersion est moins importante que dans le cas de la BBT. La composante majoritaire est déviée seulement de 1.8° par rapport au <111>.

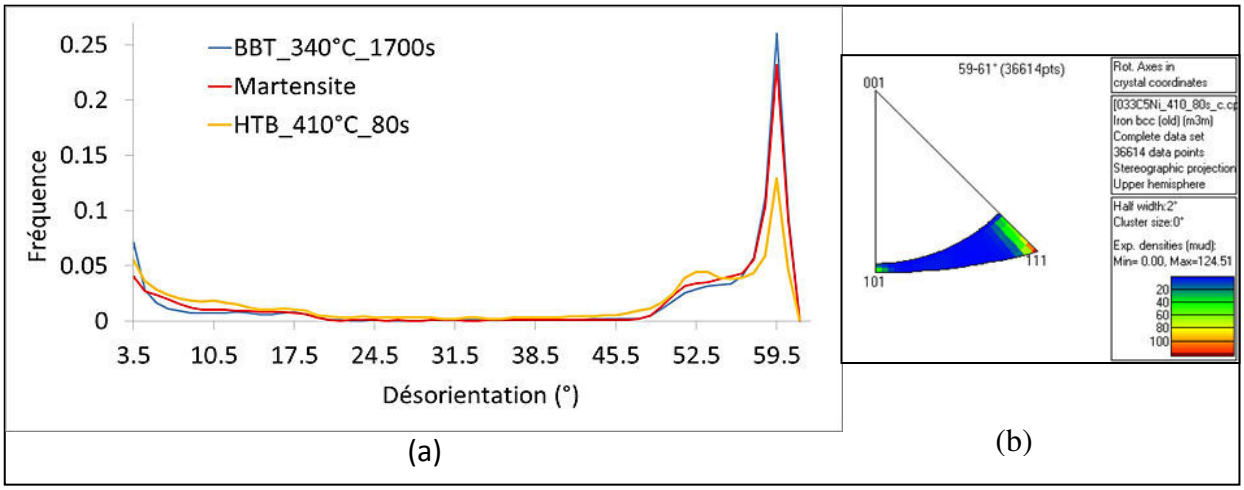


Fig.III.15 : (a) Histogrammes de désorientations angulaires associés aux trois microtextures des échantillons BBT, M et BHT de la nuance N1 et (b) la projection des axes correspondant de désorientation angulaire autour de 60° de la BHT.

II.3 Reconstruction des orientations austénitiques et évaluation de la RO moyenne

La figure III.16.a montre le résultat de l'analyse Merengue2 effectuée sur la structure BHT, qui a permis de reconstruire la phase austénitique mère.

La RO calculée est donnée par les angles d'Euler : (3.4°, 46.2°, 6°). Cela correspond aux écarts présentés par la figure III.16.b, de 1.45° entre les plans (110)α//(111)γ et de 2.26° entre les directions [1-11]α//[1-10]γ. Cette RO est significativement plus éloignée de KS que celles des microstructures précédentes BBT et M, en ce qui concerne l'alignement des plans (110)α//(111)γ.

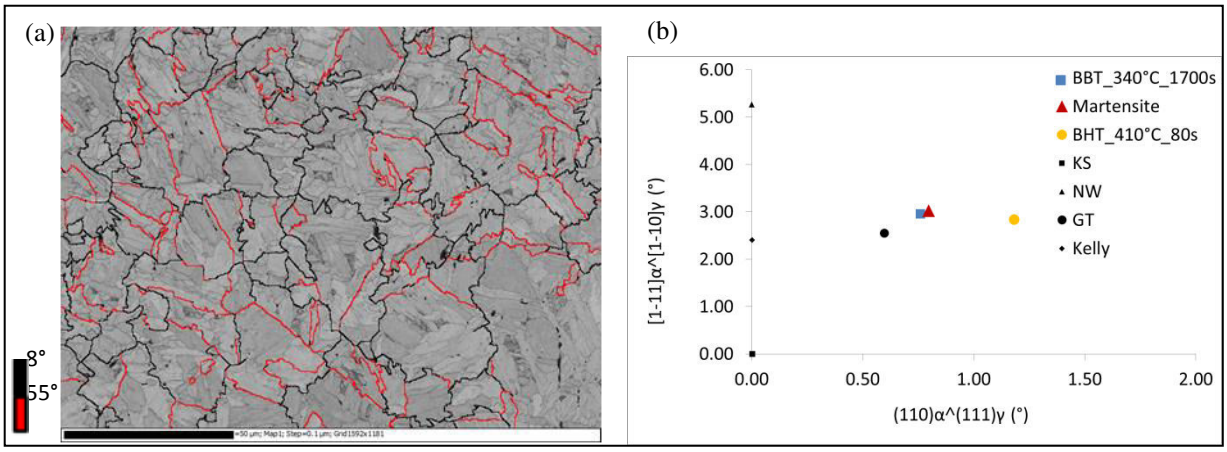


Fig.III.16 : (a) Carte austénitique reconstruite associée à l'échantillon BHT montrant les joints de grains en noir et les joints de macle en rouge, superposés au CB (b) Relation d'orientation calculée et repéré par rapport à sa déviation angulaire de la relation de KS (les RO classiquement observées pour les aciers sont aussi représentées)

La reconstruction avec Merengue2 a permis ensuite de déterminer les désorientations spécifiques entre les paquets, les blocs et les variants de la microstructure en question. Le tableau III.3 montre les couples théoriques angle/axe calculés. On note la présence de trois types de désorientations théoriques fortes au sein d'un même paquet (V1-V6) ; 60°<110>, 55°<110> et 60°<556>.

La désorientation entre les sous-blocs estimée par Merengue2 est de 5.12°<340>. Elle n'a pas pu être observée expérimentalement. Nous avions déjà vu que les joints de sous-blocs présentaient des désorientations angulaires très dispersées. Il en est de même pour les axes.

II. 4 Organisation spatiale des variants: paquet/bloc/sous-bloc

La figure III. 17 illustre l'application de Decrypt sur un grain parent dans le cas de l'échantillon BHT. Elle montre pour un grain parent, sa subdivision en paquets, puis en blocs, selon un code de couleur aléatoire. Les distributions des variants selon un code attribuant une couleur par variant sont montrées par les figures (d). Les cartographies EBSD des désorientations des mêmes PAGs sont également montrées figures (e). Pour chaque grain, un paquet a été sélectionné (f) et associé à sa figure de Pôle Inverse, parallèlement à l'axe Z. La projection stéréographique associée, des normales aux plans {100}, {110} et {111} (g), permet de visualiser les variants présents par paquet.

En comparant les figures III.17 (c), (d) et (e), il est intéressant de pointer que beaucoup de frontières de sous-blocs (d) identifiés par Decrypt au sein d'un bloc (c), correspondent à des contours de sous-blocs cohérents avec les joints de faibles désorientations visibles dans la carte (e) (joints blancs ou uniquement visiblement par la variation du contraste de bandes). Cependant, sur l'ensemble de la carte EBSD, l'identification fiable des sous-blocs reste délicate. Par conséquent, nous n'établirons pas de statistique issue de Decrypt concernant les sous-blocs.

			Désorientation	Axe	Offset
V1	P1	B1			
V2		B2	60.042	-1-10	2.049
V3		B3	60.042	110	2.049
V4		B1	5.127	-3-40	0.137
V5		B3	60.241	556	1.617
V6		B2	54.968	110	2.536
V7	P2	B3	56.057	3-13	1.553
V8		B1	17.419	-10-6	2.469
V9		B2	52.866	-313	2.543
V10		B1	17.738	0-1-4	0.947
V11		B3	51.751	5-25	1.582
V12		B2	57.862	-414	2.749
V13	P3	B1	9.5007	-14-4	0.349
V14		B3	57.862	-4-41	2.874
V15		B2	51.556	-645	0.477
V16		B2	51.55	6-56	0.061
V17		B1	12.536	0-5-3	3.306
V18		B3	52.866	331	2.543
V19	P4	B2	56.627	-3-31	1.553
V20		B1	12.536	03-5	3.456
V21		B3	51.728	-535	0.652
V22		B1	15.468	-1-3-3	1.515
V23		B3	51.556	5-46	0.409
V24		B2	51.751	552	1.581

Tab.III.3 : Les 24 variants théoriques induits par la RO calculée par reconstruction MERENGUE2 pour l'échantillon BHT, classés par paquets (CPP) P1 à P4 et précisant les désorientations spécifiques (angles et axes) qui en découlent

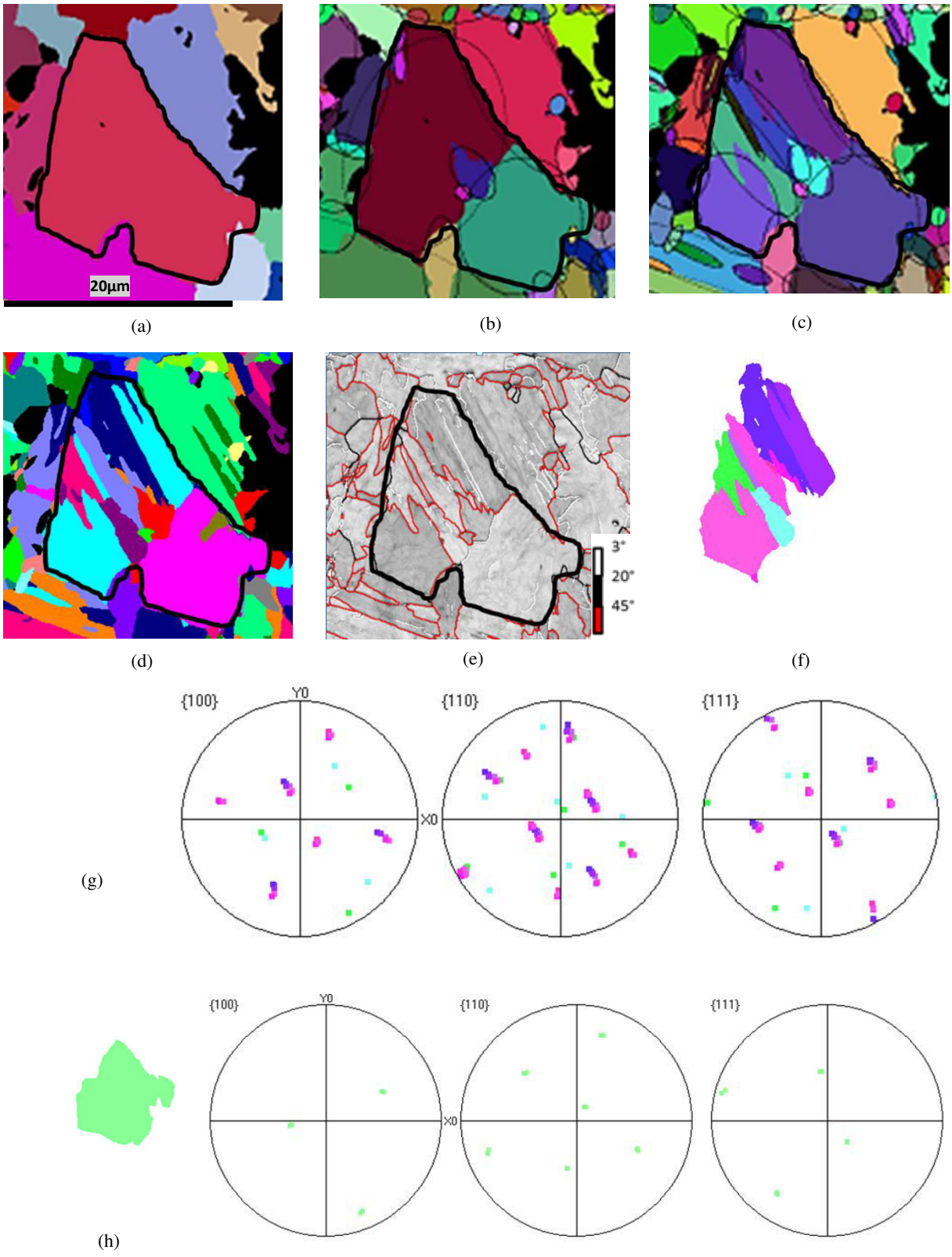


Fig.III.17 : Images issues de l'analyse Decrypt montrant (a) un exemple de PAG de BBT et sa subdivision en (b) paquets, (c) blocs, selon un code de couleur aléatoire, et (d) la distribution de ses variants selon un code attribuant une couleur par variant au sein du même grain. Cartographies EBSD (e) des désorientations de la même zone et (f) des Figures de Pôle Inverse parallèlement à l'axe Z du paquet sélectionné accompagnée de (g) la projection stéréographique associée, des normales aux plans {100}, {110} et {111} et (h) un deuxième paquet sélectionné et sa projection stéréographique associée

La figure III.18 applique notre méthodologie à l'ensemble des données de la carte EBSD. La microstructure présente des PAGs de 16µm de diamètre (en considérant les macles comme frontière de PAG). Ces PAGs sont divisés en paquets de taille moyenne de 10µm (un PAG contient en moyenne 5 paquets). Les blocs ont une taille moyenne de 5,3µm. Cependant, comme déjà signalé, ces blocs sont très dispersés en taille (voir figure III.14 où l'on distingue deux sous-populations de 2µm et 7.2µm de DCE moyen). Cela traduit une variation du nombre de blocs par paquet. Par conséquent, dans la suite, nous avons quantifié la répartition des blocs par paquet comme suit:

- 30% des paquets de cette BHT contiennent un seul bloc,
- 40% en ont deux à trois,
- 30% en contiennent plus que quatre.

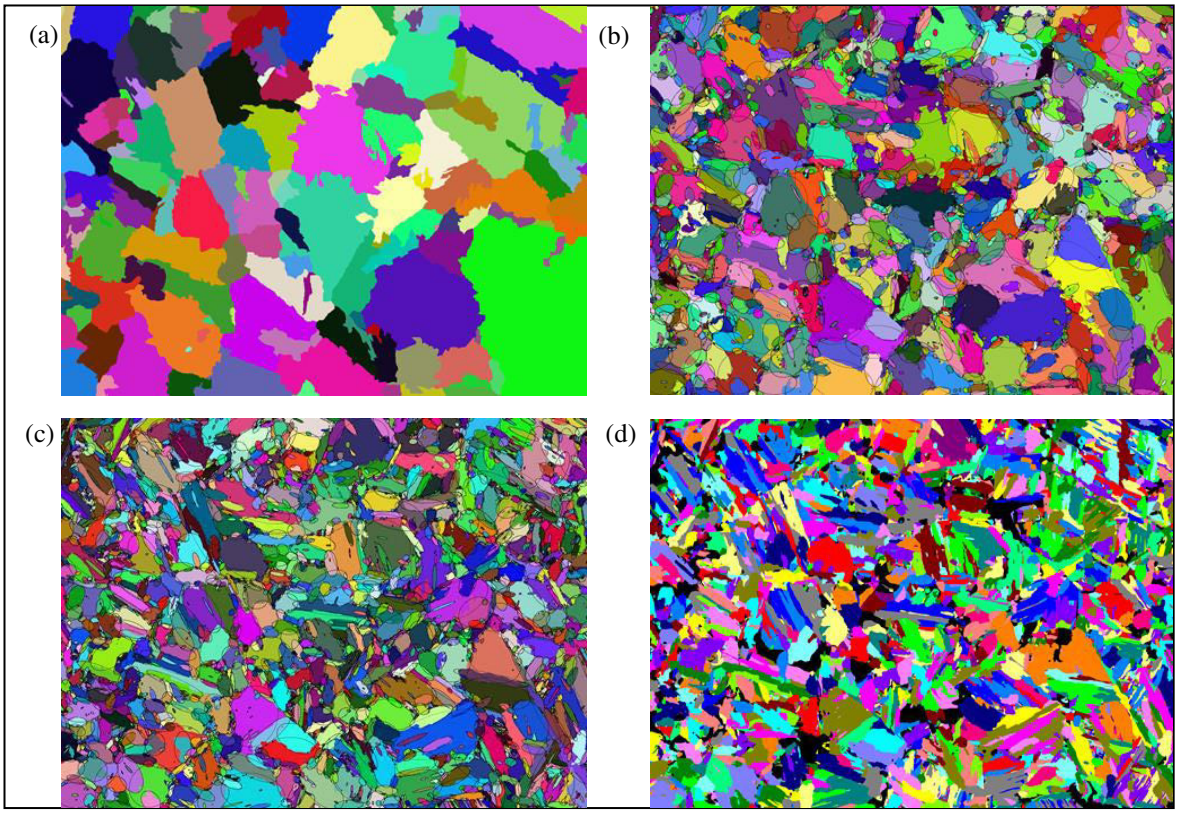


Fig.III.18 : Cartographies Decrypt de l'échantillon BHT de la nuance N1 montrant les arrangements en (a) PAGs, en (b) paquets et en (c) blocs selon un code de couleur arbitraire et (d) cartographie des variants attribuant une couleur par variant au sein du même grain.

II.5 Discussion

La figure III.19 schématise les microtextures « type » au sein de nos produits banitiques. Nous désignons les microstructures constituées de paquets contenant **au plus trois blocs de « Type A »** et celles contenant **au moins quatre blocs (et souvent beaucoup plus)** de « **Type B** ». Ce Type A correspond donc plus à de la bainite supérieure selon le critère de différenciation de Morito (Fig.III.21) et selon la classification de Zajac.

Cette description s'inscrit dans la continuité des descriptions proposées par Fururaha et Takayama [5] [6]. Cependant, les deux types A et B introduits dans ce travail ne font pas référence aux types A et B de la classification de Fururaha vue au chapitre I. Ils sont uniquement utilisés pour caractériser cristallographiquement les matrices ferritiques de nos trois microstructures.

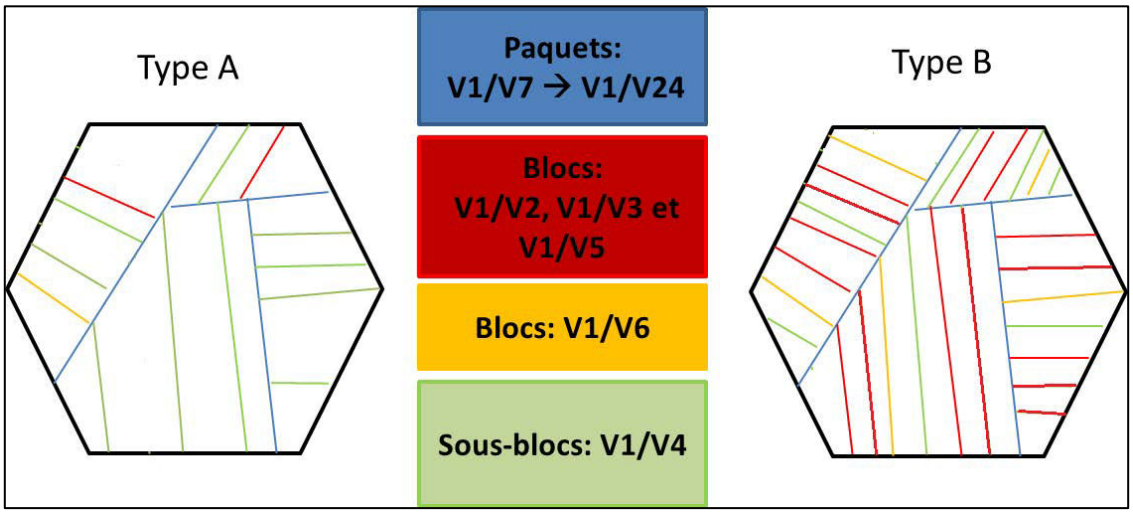


Fig.III.19 : Schéma des types cristallographiques A et B

Ces microtextures « type » peuvent donc être utilisées pour décrire nos produits de transformation, comme illustré figure III.20.

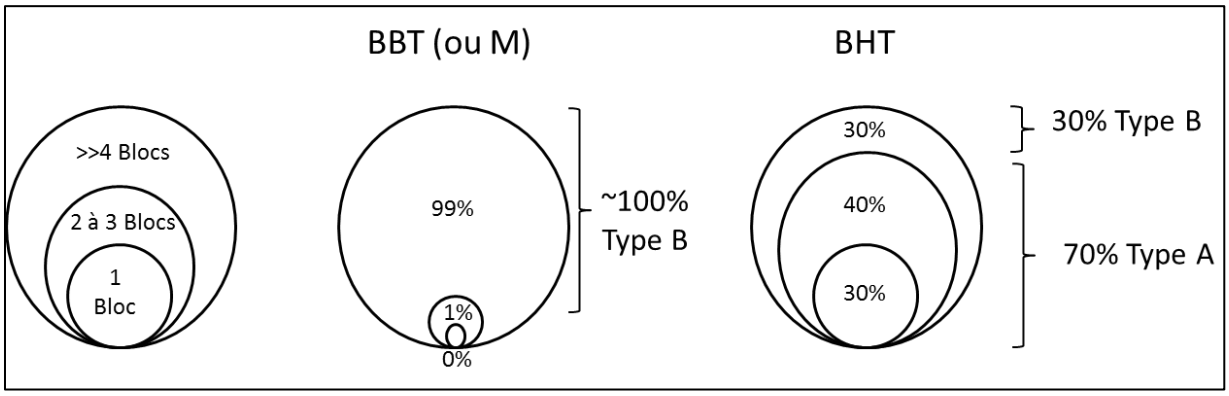


Fig.III.20 : Distribution en nombre de blocs par paquet des constituants des trois échantillons BBT, M et BHT

Cristallographiquement parlant, la martensite M et la bainite BBT appartiennent donc à ce Type B. Dans les deux cas, M et BBT, la fréquence des blocs par paquet est plus importante que celle associée à la BHT. Le Type B est par conséquent typique des microstructures martensitiques et bainitiques inférieures. En effet, d'après Morito et al. [7] la martensite et la bainite inférieure se caractérisent par une densité de joints de blocs plus élevée par rapport à la bainite supérieure (Fig.III.21). En plus, les histogrammes de désorientations associés à ce type B est cohérent avec la définition de la bainite inférieure de Zajac [8], qu'il caractérise par un pic important aux fortes désorientations.

Quant à la bainite BHT, elle est plus complexe avec seulement 30% des paquets contenant plus que 4 blocs. Nous pouvons donc déjà déduire qu'elle est à 30% de Type B. La figure III.20 résume cette composition en types A et B des trois microtextures analysées.
Cette fraction de bainite Type B contenue dans la BHT, peut être associée aux régions de lattes fines fortement désorientées.
Nous pouvons corréler ce résultat avec les observations de zones qui contiennent les carbures intra-lattes repérées par imagerie électronique au § III.1 et qui sont associés à de la bainite inférieure.
Les zones de gros domaines comportant les lattes très faiblement désorientées, caractérisent le deuxième type de bainite que nous avons nommé « Type A ». Ce type de bainite est donc caractérisé par des paquets contenant au maximum trois blocs, résultant ainsi en une microstructure plus grossière et en un nombre beaucoup moins important de joints de blocs (majoritairement désorientés à 60°), que la bainite de Type B. Ceci est en cohérence avec la diminution du pic à 60° en passant de l'histogramme de la BBT à celui de la BHT (Fig.III.15).

Le caractère mixte (de Type A et de Type B) dans la BHT peut être expliqué par le fait que, durant le processus de transformation isotherme, le type A se forme d'abord causant des contraintes internes dans l'austénite avoisinante non transformée. Ceci favorise donc la formation de lattes fines auto-accommodées pour compenser l'effet des contraintes créées dans l'austénite, et fait apparaitre par la suite davantage des joints de blocs fortement désorientés.

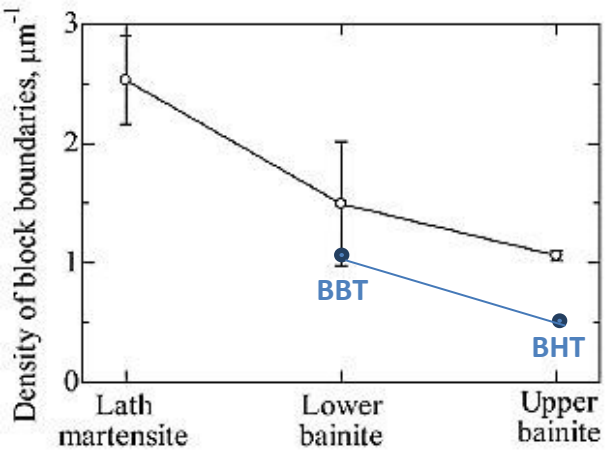


Fig.III.21 : Courbe de la densité de joints de blocs associée à la martensite en lattes, la bainite inférieure et la bainite supérieure [7]. On reporte en bleu, les valeurs des densités de joints de blocs pour les microstructures BBT et BHT de la nuance N1. Les valeurs sont plus basses que celles de Morito et al.. Cela est cohérent avec des tailles de PAGs plus petites (17µm Vs ~30µm)

III. Conclusion

Le tableau III.4 affiche un récapitulatif de tous les résultats déjà annoncés aux paragraphes précédents.

	BBT	M	BHT	
Type A / B	Type B	Type B	70% Type A	30% Type B
Taille de PAG (µm) (DECRYPT)	17.5	17.75	16	
Taille de paquet (µm) (DCE) (DECRYPT)	9	9.9	10	
Taille (DCE) / fraction surfacique des blocs par sous-population (EBSD) (trie par leur surface s) - ceux de $0.5\mu m^2<s<15\mu m^2$ - ceux de $s>15\mu m^2$	1.6µm/65% 6.0µm/35%		2.0µm/34% 7.2µm/65%	
Type de carbures (MEB/MET)	Inter & Intra -lattes	—	Inter-lattes	Inter & Intra -lattes
Nombre de blocs par paquet (DECRYPT)	≥ 4 (en moyenne 21)	≥ 4 (en moyenne 27)	≤ 3	≥ 4

Tab.III.4 : Type de microtexture et tailles moyennes caractéristiques des différentes entités cristallographiques issues de la transformation de phase, pour les trois échantillons analysés.

D'après le tableau III.4, la BBT et la martensite ont plusieurs caractéristiques microstructurales et cristallographiques en commun. Par contre, la microstructure de la BHT présente des différences associées à la présence de bainite de Type A. Cette dernière plus grossière et contenant une faible densité de joints de blocs sera associée à de la bainite supérieure [7]. Nous verrons dans les prochains chapitres que cette bainite de Type A (supérieure) interviendra significativement dans l'évolution des microstructures en condition de vieillissement isotherme.

Le nombre moyen de blocs par paquet constitue un critère pour différencier les deux microtextures bainites de Type A et de Type B, et aussi pour quantifier leurs fractions respectives dans le cas d'une structure mixte BHT + BBT ou BHT + M. Ce critère sera adopté dans les chapitres suivants. On peut également préciser que la même analyse a été appliquée à la nuance N2, pour les 3 échantillons BBT, M et BHT. Les résultats sont présentés en Annexe 1. A nouveau, il est possible de distinguer les composantes de type A et de type B dans les différents produits de transformation. Il apparait en plus dans la BHT (Nuance N2), une fraction importante est de structure déjà granulaire. Le chapitre suivant reviendra sur l'origine possible de cette composante, en approfondissant les évolutions de microtexture de nos échantillons lors d'un vieillissement.

IV. Références

[1] H. Sato, S. Zaefferer, Acta Materialia, 57, 2009, 1931-1937.

[2] A.F. Gourgues, International Materials Reviews, 52, 2007, 65-128.

[3] P. W. Trimby, Ultramicroscopy, 120, 2012, 16-24.

[4] J.J. Fundenberger, E. Bouzy, D. Goran, J. Guyon, Morawiec, Microscopy and Microanalysis, S3 Cambridge, 21, 2015, 1101-1102.

[5] T. Furuhara, H. Kawata, S. Morito, T. Maki, Materials Science and Engineering A 431, 2006, 228–236.

[6] N. Takayama, G. Miyamoto, T. Furuhara, Acta Materialia 60, 2012, 2387–2396.

[7] S. Morito, A.H. Pham, T. Hayashi, T. Ohba, Materials Today: Proceedings 2S, 2015, 913-916.

[8] S. Zajac, V. Schwinn and K.H. Tacke, Int. Symposium μ-aS'05, San Sebastian, 2005.

Chapitre IV: Etude comparée des microstructures bainitiques et martensitiques après maintien isotherme

I. Vieillissement en condition de sur-transformation ou de revenu 134
I.1 Microstructure bainitique basse température et martensitique 125
I.2 Microstructure bainitique haute température 139
I.2.1 Décomposition de la matrice ferritique..... 139
I.2.2 Maturation des carbures 142
II. Effet de la température du maintien sur l'évolution des deux microstructures bainitiques BBT et BHT 145
II.1 Effet de l'augmentation de la température de maintien pour la BBT 145
II.2 Effet de la diminution de la température du maintien sur la bainite BHT..... 146
III. Discussion 147
III.1. Condition de granularisation 147
III.2. Quantification du niveau de décomposition de la matrice ferritique 147
IV. Conclusions..... 149
V. Références 150

Introduction

Ce chapitre concerne l'étude du vieillissement lors d'un maintien isotherme des microstructures spécifiques décrites dans le précédent chapitre, à savoir : une bainite basse température (BBT), complétée par une comparaison à une martensite (M), et une bainite haute température (BHT). On s'intéressera principalement aux évolutions de ces microstructures dans l'acier modèle N1 Fe-0,33C-5Ni. Des résultats obtenus aussi sur la nuance N2 Fe-0,13C-5Ni permettront de conforter certaines conclusions.

En fait, en condition industrielle, les microstructures bainitiques peuvent subir des traitements thermiques prolongés à haute température. C'est le cas en particulier lors du bobinage suite à l'opération de laminage à chaud. Les microstructures bainitiques juste transformées sont maintenues à la température de transformation pendant plusieurs heures, à cause de l'inertie thermique des bobines. C'est pourquoi, nous avons choisi d'étudier de possibles évolutions microstructurales pour des maintiens prolongés jusqu'à 5h.

Comme les microstructures en lattes, bainitiques ou martensitiques, sont des microstructures hors équilibre thermodynamique, elles peuvent être sujettes à évolution lors d'un maintien thermique. Nous avons décrit les mécanismes d'évolution connus dans ces structures et leurs forces motrices au Chapitre I § IV. Ils concernent à la fois la matrice ferritique et les carbures. Pour une température donnée, les cinétiques de ces mécanismes sont plus ou moins rapides en fonction de la mobilité, la topologie des interfaces. Cet état de l'art suggère que les évolutions microstructurales dans nos aciers bainitiques et martensitiques (pour des températures de maintien isotherme <500°C) devraient être limitées à :

- une éventuelle précipitation de la cémentite dans la martensite revenue, sans aucun changement morphologique des lattes,

- une possibilité de restauration à l'intérieur des lattes. Le mécanisme de coalescence est exclu d'après nos calculs préliminaires.

Les conditions de transformation et de vieillissement étudiées dans ce chapitre sont synthétisées dans le tableau IV.1, extrait du tableau de référence du chapitre II (Tab.II.3). Les différents états obtenus ont principalement été analysés au moyen de l'imagerie électronique et d'analyses couplées EBSD/Merengue2. Celles-ci visent à établir la stabilité relative de chacune des trois microstructures de transformation de phase, lors des traitements thermiques ultérieurs.

Dans une première partie, nous caractériserons le vieillissement des microstructures bainitiques aux températures de transformation initiale (T_{BBT} =Ms+15°C pour la BBT et à $T_{BHT} \geq M_S$+85°C pour la BHT). On peut donc parler de paliers isothermes de « sur-transformation ». Les microstructures martensitiques ont par contre été vieillies à Ms + 15°C. Nous montrerons que les évolutions les plus rapides sont obtenues à partir de la bainite BHT.

La température de vieillissement joue aussi un rôle que nous aborderons dans une seconde partie. Ainsi des microstructures bainitiques BHT ont aussi été vieillies à des températures inférieures à T_{BHT} et des microstructures bainitiques BBT ont été vieillies à des températures supérieures à T_{BBT}.

Enfin, dans une troisième partie, nous mettrons en place les outils qui permettent de quantifier les processus d'évolution morphologique que nous appellerons « granularisation ». Ces outils permettront dans le chapitre suivant de comparer les cinétiques d'évolution.

(a) Nuance N1

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température/Temps	Dureté (HV)[7]
BBT	340°C / 1700 s	347
M	Trempe	520
BHT	410°C / 80 s	302
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température/Temps	Dureté (HV)
BBT-ST-1	340°C / 5h	326
BBT-ST-2	340°C / 1700s + 360°C / 30min	335
BBT-ST-3	340°C / 1700s + 360°C / 5h	315
BBT-ST-4	340°C / 1700s + 380°C / 30min	
M-R	Trempe + 340°C / 5h	310
BHT-ST-1	410°C / 200s	256
BHT-ST-2	410°C / 950s	242
BHT-ST-3	410°C / 80s + 340°C / 870s	264

(b) Nuance N2

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BBT	380°C / 50 s	321
BHT	470°C / 20s	209
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BBT-ST-1	380°C / 30min	310
BBT-ST-2	380°C / 5h	291

Tab.IV.1 : Traitements thermiques réalisés et dénominations des échantillons correspondants (a) Nuance N1 (nuance de référence Fe-0.15C-5Ni) et (b) Nuance N2 (Fe-0.33C-5Ni). Les duretés Vickers de certains échantillons ont été mesurées à des fins de comparaison.

I. Vieillissement en condition de sur-transformation ou de revenu

I.1 Microstructure bainitique basse température et martensitique

Cas de la Nuance 1 : Nuance de référence

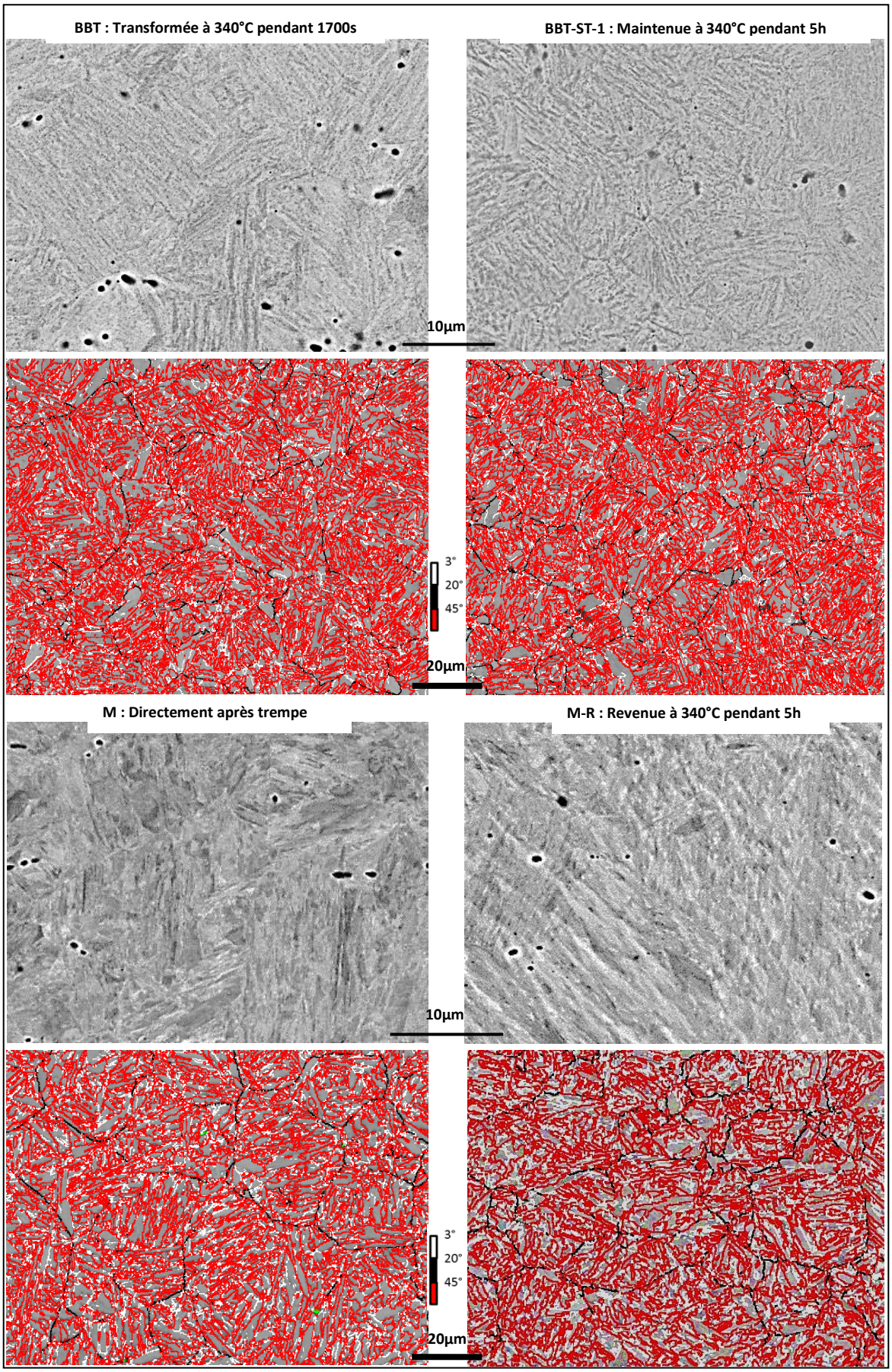
Les deux microstructures des échantillons BBT et M, obtenues respectivement après transformation complète à 340°C et après trempe, ont été décrites et discutées dans le détail au chapitre III. On rappelle que l'échantillon BBT présente les caractéristiques cristallographiques de type B (selon notre classification introduite au chapitre III); Sa microstructure correspond à une bainite inférieure. L'échantillon BBT-ST-1 a subi un maintien de sur-transformation à 340°C pendant 5h d'après le tableau IV.1. La martensite (échantillon M, avec des caractéristiques cristallographiques de type B également), quant à elle, a été investiguée dans son état revenu (échantillon M-R) à 340°C pendant 5h.

[7] Les mesures de dureté ont été effectuées sur un microduromètre ZwickeRoll/Indentec, à 1/4 de l'épaisseur de l'échantillon pour éviter les hétérogénéités et les défauts au centre et les décarburations aux bords. La valeur indiquée correspond à la moyenne d'une filiation de dix mesures.

Dans cette partie, nous analysons l'effet de ces traitements de vieillissement sur les évolutions de microstructure.
Les images électroniques (BSE) et les cartographies EBSD de la figure IV.1.a comparent les microstructures directement après transformation ou trempe (échantillons BBT / M) (identiques à celles des figures 2 et 10 du chapitre précédent) et après le traitement de vieillissement (échantillons BBT-ST-1 et M-R). Dans les deux cas, les microstructures après traitement sont homogènes et présentent toujours une structure en lattes très marquée, même après traitement thermique. La morphologie et la taille des lattes (vues au MEB et en EBSD) n'ont pas été affectées par le traitement.
La figure IV.1.b montre les histogrammes de désorientations associés aux données EBSD. Dans les deux cas, la superposition des histogrammes avant et après traitement est notable. Le pic à 60° par exemple, a toujours une amplitude de 0.26 pour les BBT et de 0.23 pour les martensites. Cela montre que l'organisation spatiale des variants n'a pas été modifiée par le traitement.
Par ailleurs, la figure IV.2 indique les ROs moyennes calculées avec Merengue2 pour les microstructures traitées pendant 5h et les compare à celles obtenues sans traitement de vieillissement. Les écarts observés vis à vis de l'alignement des plans et des directions de référence (RO de KS) sont très faibles (inférieurs à 0.1°, valeur qui correspond à la marge d'erreur pour l'estimation de la RO moyenne pour ce type de microstructure avec Merengue2).
Ces différentes analyses confirment donc l'absence totale d'évolution de la matrice ferritique de la bainitique basse température et de la martensitique à 340°C pendant 5h dans le cas de la nuance N1.
Concernant les carbures, il est très difficile de détecter leur évolution dans les structures bainitiques. Par contre, la microstructure martensitique montre une fine précipitation de carbures, comme attendu pour un revenu de stade III (détaillé au chapitre I § IV.1). Cependant, cet aspect n'a pas été approfondi.

Comme indiqué dans le tableau IV.1, on observe une diminution significative de la dureté pour les deux types d'échantillons. Pour la martensite, la dureté passe de 520 à 310HV et pour la bainite basse température, de 347 à 326 HV. Cette diminution peut être attribuée à un mécanisme de restauration de la matrice ferritique et d'évolution des carbures, phénomènes plus marqués dans la martensite que dans la bainite.

(a)


BBT : Transformée à 340°C pendant 1700s
BBT-ST-1 : Maintenue à 340°C pendant 5h
10µm
3°
20°
45°
20µm
M : Directement après trempe
M-R : Revenue à 340°C pendant 5h
10µm
3°
20°
45°
20µm

(b)

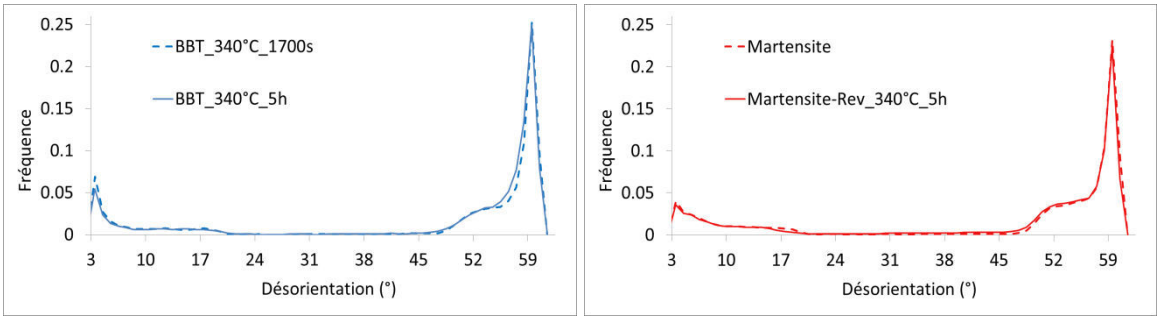


Fig. IV.1 : Echantillons BBT (transformé à 340°C/1700s), BBT-ST-1 (sur-transformé à 340°C/5h), M (trempe martensitique) et M-R (trempé et revenu à 340°C/5h) de la nuance N1 : (a) Micrographies MEB (BSE) et carte de désorientations angulaires (selon le code de couleur indiqué sur la figure), (b) Histogrammes de désorientations angulaires associés aux données EBSD, comparant à gauche les échantillons de type BBT et à droite les échantillons de type M.

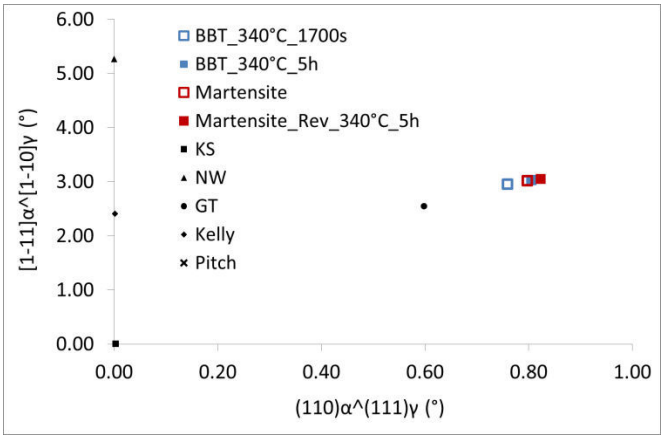


Fig.IV.2 : Nuance 1 : ROs déterminées sur les échantillons BBT (transformé à 340°C/1700s), BBT-ST-1 (sur-transformé à 340°C/5h), M (trempe martensitique) et M-R (trempé et revenu à 340°C/5h) et comparées aux ROs standards. Ces résultats sont obtenus grâce au post-traitement des données EBSD sur MERENGUE2.

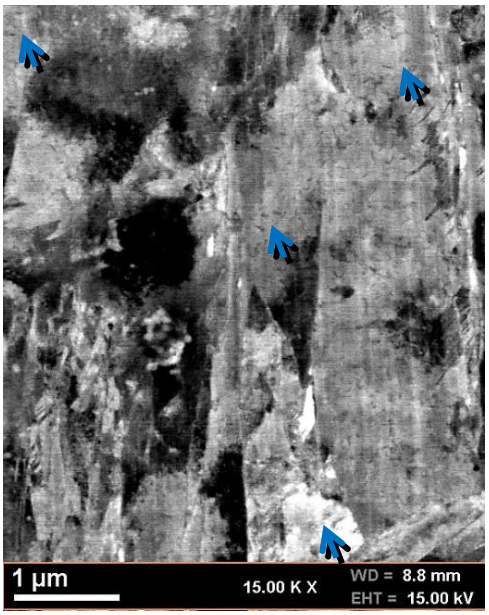


Fig.IV.3 : Précipitation des carbures fins dans les lattes de martensite revenue pour la nuance N1

Cas de la Nuance 2 :

Le même constat a été obtenu sur l'échantillon BBT de la nuance N2. On rappelle que la microstructure initiale (pour un palier bainitique de 50s à 380°C (Ms+15°) et avant sur-transformation) est présentée en Annexe 1. La microtexture de cet échantillon est de type B; Sa microstructure correspond comme pour la nuance N1, à une bainite inférieure.

La figure IV.4 montre des micrographies MEB en SE et les cartographies en EBSD des échantillons BBT (transformé à 380°C/50s) et BBT-ST-2 (sur-transformé à 380°C/5h). Les cartographies EBSD indiquent les joints en fonction de leurs désorientations angulaires, selon notre convention de référence. La figure IV.5.a représente les histogrammes de désorientations angulaires obtenus à partir des cartes EBSD (Fig.IV.4) pour les deux échantillons respectivement, et la figure IV.5.b représente les RO moyennes déterminées avec Merengue2.

La microstructure BBT-ST-2 est similaire à celle de la BBT, tant du point de vue de la morphologie des lattes et de la distribution des carbures, des microtextures ou des ROs. On obtient donc un résultat similaire à celui concernant la nuance N1, à une température toutefois plus élevée (380°C au lieu de 340°C en 5h, soit des valeurs du paramètre d' Hollomon-Jaffe H_{HJ} entre 12.7 et 13.5). Il s'agit donc d'un résultat cohérent avec la littérature. Pour des paramètres H_{HJ} inférieurs à 18, on n'attend pas d'évolutions significatives de la microstructure bainitique d'après [1].

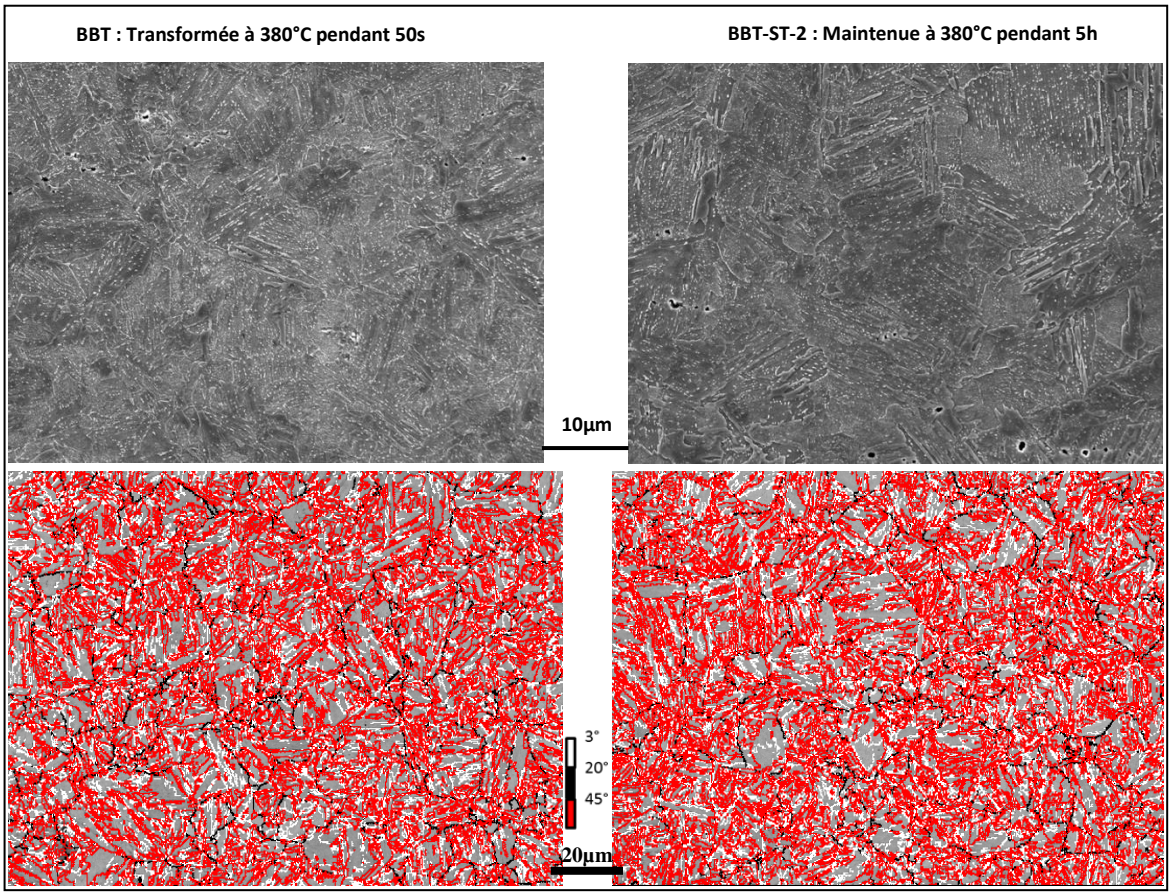
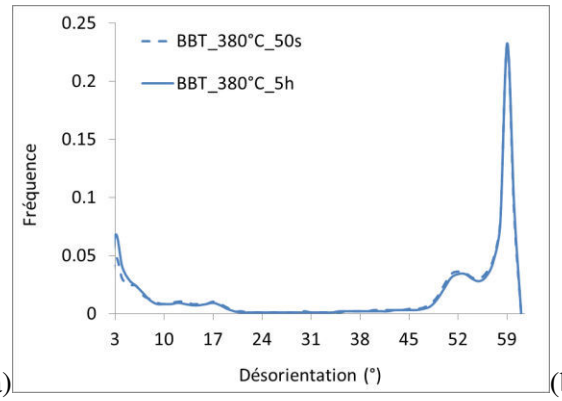


Fig. IV.4 : Nuance 2- Micrographies MEB (SE) et carte de désorientations angulaires (selon le code de couleur indiqué sur la figure) des échantillons BBT (transformé à 380°C/50s) et BBT-ST-2 (sur-transformé à 380°C/5h).

(a) 

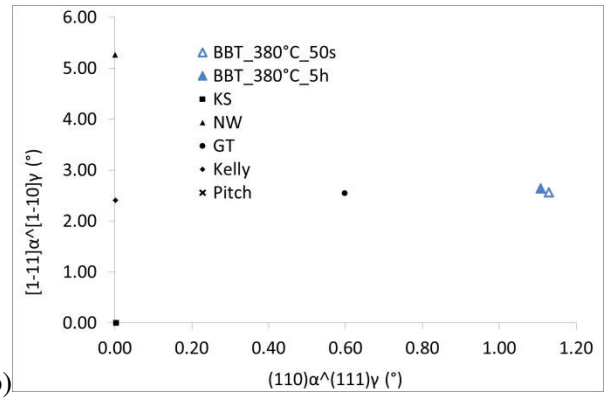
(b) 

Fig. IV.5 : Exploitation des données EBSD (Fig. IV.4) des échantillons BBT (transformé à 380°C/50s), BBT-ST-2 (sur-transformé à 380°C/5h) de la nuance N2 : (a) Histogrammes de désorientations angulaires associés, (b) ROs déterminées avec Merengue2.

I.2 Microstructure bainitique haute température

Les bainites Hautes Températures BHT présentent a contrario un comportement très différent en condition de sur-transformation. Après un temps très court de maintien, elles subissent des évolutions morphologiques remarquables au niveau de la matrice ferritique ainsi qu'au niveau des carbures. On parlera là, respectivement, d'un processus de décomposition de la matrice ferritique et de maturation des carbures.

I.2.1 Décomposition de la matrice ferritique

L'étude de l'évolution morphologique et cristallographique a été principalement menée en ESBD, pour la nuance N1. On rappelle que l'échantillon BHT (formée à Ms+85°C) présente les caractéristiques cristallographiques de type A (70%) et de type B (30%) (selon notre classification introduite au chapitre III); Sa microstructure correspond à une structure mixte de bainite inférieure et supérieure.
Les figures IV.6.a, b et c montrent respectivement des cartographies EBSD des échantillons BHT (a) BHT-ST-1 (b) et BHT-ST-2 (c) (i.e. après transformation à 410°C de 80s et sur-transformation à cette même température pour un temps total de 200s et 950s). Les figures IV.6.d, e et f correspondent aux reconstructions de la structure austénitique mère, obtenues avec MERENGUE2 pour ces mêmes cartographies ESBD. Les histogrammes de désorientations angulaires correspondant aux données EBSD sont donnés sur la figure IV.7.a. Les ROs moyennes obtenues lors des reconstructions ont été représentées avec la convention habituelle sur la figure IV.7.b.

Après sur-transformation de 200s seulement, la morphologie initiale en lattes des domaines cristallins se décompose partiellement. La dite décomposition consiste en la disparition des blocs de morphologie aciculaire (essentiellement les joints de 60° en rouge), pour donner des grains équiaxes de taille moyenne 8.5 µm. Les tailles des nouveaux grains bainitiques sont de l'ordre de grandeur des paquets (voir chapitre III, section IV).

Cette évolution s'accompagne donc d'une modification sensible de l'histogramme des désorientations. En effet, on note après 200s (120s de sur-transformation) une diminution du pic à 60°, passant d'une amplitude initiale de 0.13 à une amplitude après sur-transformation de 0.06. Par ailleurs, avec MERENGUE2, on a obtenu une reconstruction partielle de seulement 28% de la microstructure mère, pour l'échantillon BHT-ST-1, contre ~90% de reconstruction pour la BHT initiale. La RO moyenne qui maximise la reconstruction est définie par les angles d'Euler (2.77°,45.72°, 6.48°). Elle est différente de celle obtenue avant

sur-transformation, comme le montre la figure IV.7.b. Il est possible que ce soit un effet lié à la dispersion des orientations au sein des domaines de bainite décomposés.

En prolongeant le maintien de sur-transformation jusqu'à 870s (palier total de 950s depuis le début de la transformation), la bainite en lattes résiduelle continue à se décomposer. Le pic à 60° de l'histogramme des désorientations diminue davantage pour atteindre une valeur de 0.04. Par conséquent, en fréquence relative, les désorientations aléatoires (entre 20° et 45°) augmentent. Localement, il n'y a plus assez de variants pour identifier des fragments de grains parents. Par conséquent, et comme l'illustre la cartographie obtenue par MERENGUE2 sur la figure IV.6.f, seul 9% de la microstructure austénitique mère associée à la BHT-ST-2 (à 410°C/950s) a pu être reconstruite.

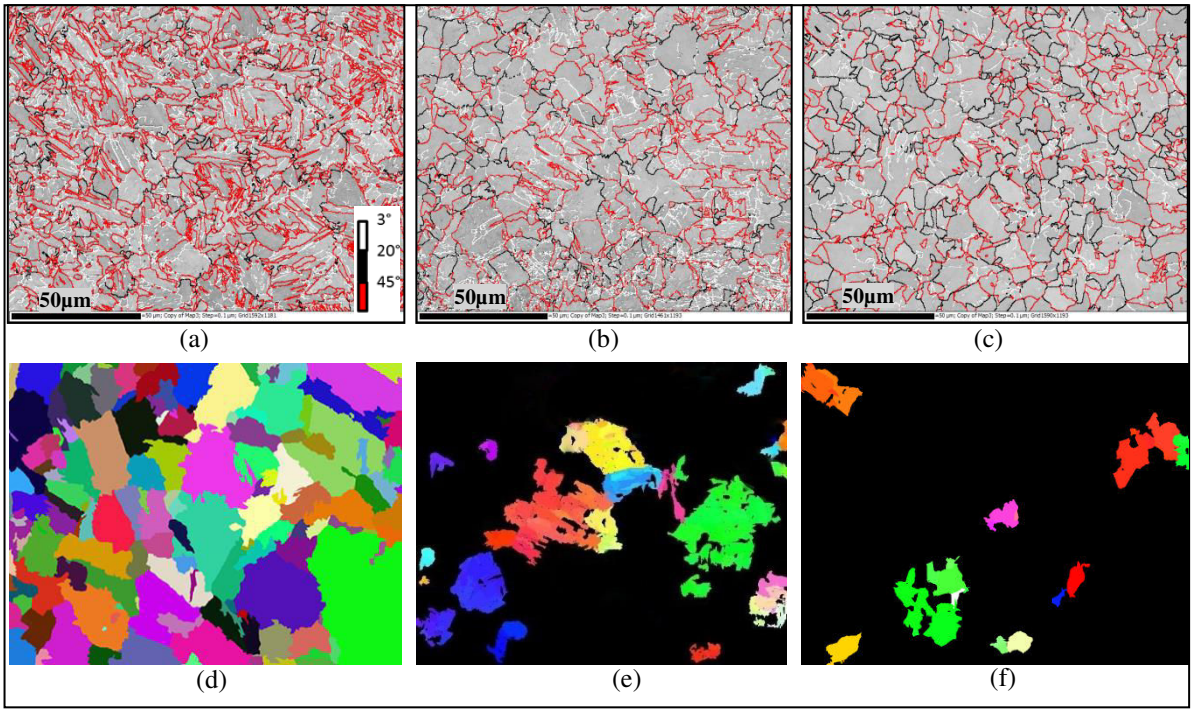


Fig.IV.6 : Nuance 1: Cartographies de désorientations angulaires des échantillons (a) BHT (transformé à 410°C/80s), (b) BHT-ST-1 (sur-transformé à 410°C/200s) et (c) BHT-ST-2 (sur-transformé à 410°C/950s). Notre code couleur de référence est rappelé sur la figure. (d à f) Reconstruction des anciens grains austénitiques par MERENGUE2 des mêmes champs (les grains reconstruits ont des couleurs aléatoires, les zones non-reconstruites sont noires).

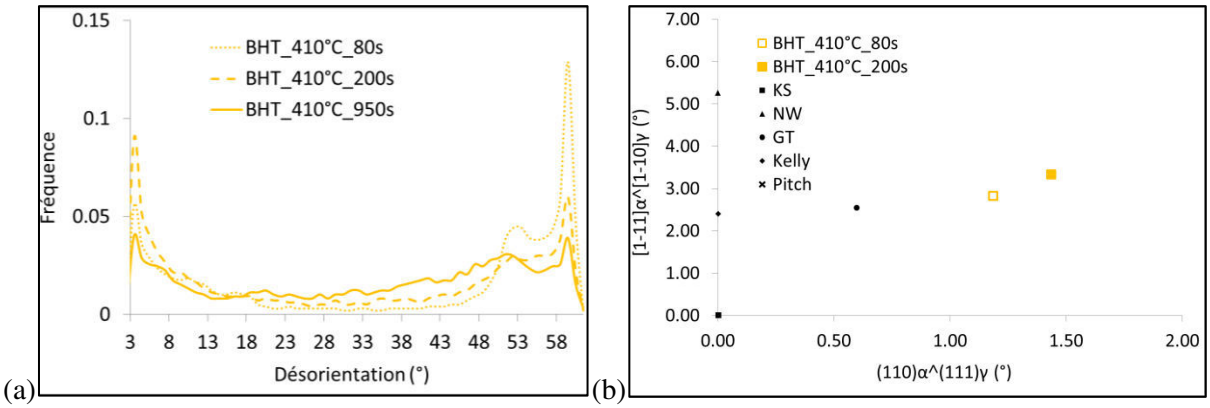
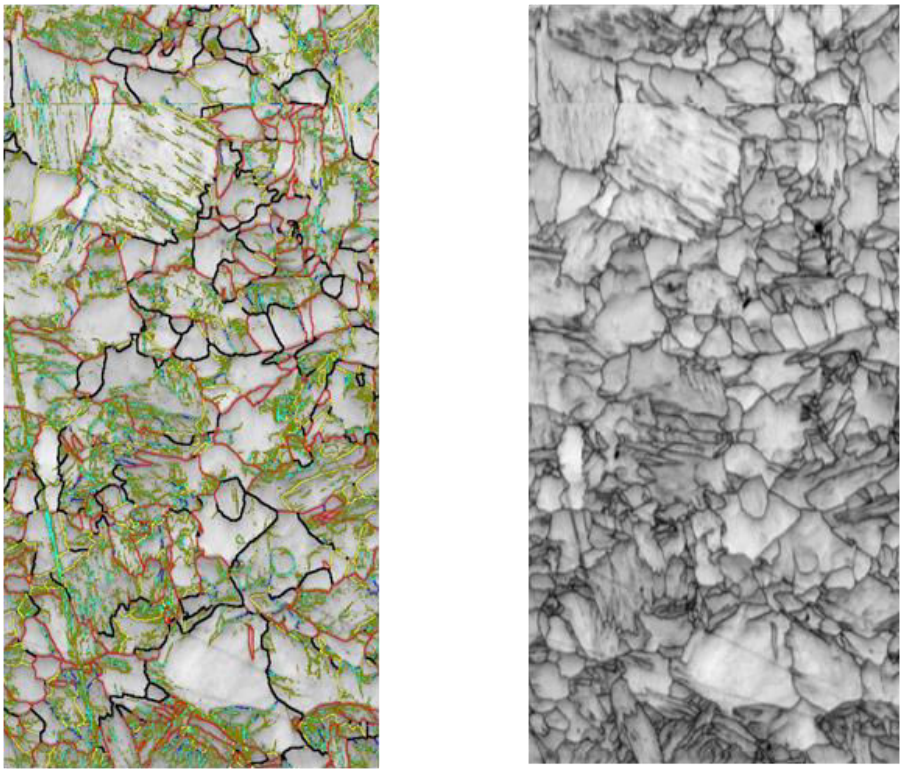


Fig.IV.7 : (a) Histogrammes de désorientations angulaires mesurés par ESBD sur des échantillons BHT (transformé à 410°C/80s), BHT-ST-1 et -2 (sur-transformés à 410°C/200s et à 950s) (b) ROs déterminées avec Merengue2 sur les mêmes échantillons et comparées aux ROs standards.

En complément de l'étude réalisée pour l'échantillon BHT sur la nuance N1, nous pouvons rappeler les caractéristiques de la BHT dans l'acier de nuance N2 (détaillées en ANNEXE 1). Après le palier de transformation (23s à 470°C= Ms+110°C), la BHT se caractérise par une microstructure déjà grossière en termes de taille et de morphologie polygonale.

La figure IV.8 présente une zone de la carte EBSD de désorientation (a) et la carte de l'indice de qualité de diffraction associée (b). Le code de couleur des désorientations a été adapté pour révéler les très faibles désorientations jusqu'à 0.5°. Cette figure révèle différentes configurations du réseau de désorientations internes aux domaines bainitiques. On reconnait de larges domaines cristallographiques de type A comportant des lattes très faiblement désorientées. Les joints de lattes sont révélés par les variations de l'indice de qualité de diffraction et ont majoritairement des désorientations <1° (ces lattes correspondent à un même variant). Ces domaines (50% en fraction surfacique) sont associés à de la bainite supérieure par analogie avec celle détectée dans la BHT de la nuance N1 (cf. Chapitre III. § II). Dans certains domaines, ces lattes sont en cours de décomposition pour former des zones ne présentant plus de désorientations internes (dans la limite de la résolution angulaire des données EBSD). Leur indice de qualité de diffraction élevé (codé en blanc) confirme une zone avec peu de dislocations. On reconnait enfin des domaines granulaires (40% en fraction surfacique) sans désorientation interne. On estime à 10% la présence de configuration cristallographique de type B (qui correspondrait à de la bainite inférieure). L'analyse EBSD couplée à Merengue2 n'a permis de reconstruire que 60% de la microstructure, essentiellement les zones correspondant à des domaines mixtes de type A et B.



(a) (b)

Fig.IV.8 : Nuance N2 - Echantillon BHT: (a) une zone de la carte de désorientation acquise en EBSD et (b) la carte de l'indice de qualité de diffraction associée. Le code de couleur des désorientations a été adapté pour révéler les très faibles désorientations jusqu'à 0.5°. ([0.5°-1°] : vert olive; [1°-3°] : bleu clair; [3.°-6°], bleu marine, [6°-25°] : jaune; [25°-45°] : noir; >45° en rouge).

Cette structure bainitique étant déjà majoritairement granulaire, nous avons décidé de ne pas étudier son vieillissement. Toutefois, la similitude entre la microstructure de l'échantillon BHT de la nuance N2 et celle de l'échantillon BHT de la nuance N1 après sur-transformation pose question. Une possible explication est que la structure BHT de la nuance N2 (observée après 23s à 470°C) est déjà partiellement décomposée y compris sur des temps extrêmement courts. Les paramètres de Hollomon-Jaffe sont similaires dans les deux cas (13.14 pour la BHT de la nuance N2 et 12.80 pour la BHT-ST-1 (200s), 13.24 pour la BHT-ST-2 (950s) de la nuance N1). La concomitance entre les deux mécanismes - de transformation bainitique en lattes et processus de décomposition des lattes- peut possiblement expliquer pourquoi on observe des bainites granulaires aux températures de transformations élevées et pour une teneur en carbone plus faible. Il est toutefois difficile de découpler les effets de température et de teneur en carbone sur la cinétique accélérée de ce vieillissement.

En conclusion, la BHT subit un processus de décomposition de la matrice ferritique initialement en lattes, vers une structure plutôt équiaxe après un temps de vieillissement très court (centaines de secondes) et pour des paramètres de Hollomon-Jaffe faibles (à partir de 12.8).
Des états similaires à la microstructure finale BHT-ST-2 (N1) ne sont observés dans la littérature pour des bainites en lattes, que dans le cas de vieillissements à plus hautes températures et après des temps de maintien longs (quelques heures/ 600°C) voire très longs (1 année/ 500°C) [2], i.e. pour des paramètres de Hollomon-Jaffe supérieure à 18.
Autre observation intéressante : notre microstructure ferritique initiale (pour l'échantillon BHT de la N1) se caractérise par une microtexture à 70% de type A (bainite supérieure) et à 30% de type B (bainite inférieure). Lors de la décomposition, cette fraction de type B est « consommée » rapidement. Or nous avons vu dans la partie I.1 de ce chapitre que la bainite inférieure seule ne subissait pas d'évolution lors du vieillissement à sa température de transformation. Nous nous sommes donc légitiment posés la question de l'effet de la température sur l'évolution en maintien isotherme de la bainite inférieure. Cette étude spécifique fera l'objet de la section II.

L'étude du vieillissement des microstructures BHT des deux nuances, nous a donc révélé un phénomène significatif, répétable de décomposition rapide de la matrice ferritique en condition de sur-transformation (voir même en cours de transformation). Au sein des domaines bainitiques de microtexture de type A, cette décomposition consiste en la disparition des joints de lattes faiblement désorientés comme lors d'une coalescence (cf. chapitre I). Mais cette décomposition affecte aussi les zones présentant des microtextures de type B, constituées de blocs fortement désorientés et de morphologies aciculaires (pouvant contenir des sous-blocs, donc deux variants faiblement désorientés). Ces processus de décomposition résultent, dans les deux cas, en des structures finales granulaires, présentant plus ou moins des désorientations intra-granulaires en fonction de l'avancement du vieillissement. Ils sont également accompagnés d'une maturation de la microstructure de carbures, étude que nous allons développer dans la prochaine section pour la nuance N1.

I.2.2 Maturation des carbures

La figure IV.9 présente des micrographies MEB après attaque chimique pour les échantillons de la nuance N1 : BHT (80s à 410°C) (a) et BHT-ST-1 (200s à 410°C) (b). Juste après transformation, les carbures sont arrangés en lignes parallèles correspondant aux joints de blocs et/ou de lattes, et donc principalement inter-lattes. Cette distribution spatiale est maintenue en grande partie après vieillissement et donc après disparition de la structure en lattes. Une grande partie des carbures se retrouvent donc dispersée à l'intérieur des nouveaux grains bainitiques décomposés. En revanche, on observe un grossissement de particules

(atteignant jusqu'à 140 nm de large) et une distribution très hétérogène de taille. Ceci révèle un processus de maturation des carbures avec dissolution des carbures de petites tailles au profit du grossissement des plus gros. La sphéroïdisation de certains carbures a également pu être mise en évidence dans certains échantillons.

Autre fait significatif, on observe aussi après vieillissement une croissance inattendue de carbures filmogènes aux joints des domaines bainitiques décomposés. Ils ont des largeurs qui varient entre 50 nm et 100 nm. Ces films ne sont toutefois pas strictement continus le long de ces joints. En effet, des observations en MET réalisées sur d'autres échantillons de notre campagne et présentant ce type de carbures filmogènes, ont montré que ces films sont en réalité des arrangements très denses de carbures polygonaux. Il est très probable que les joints des domaines bainitiques décomposés offrent des court-circuits diffusionnels propices au développement de ces agglomérats de carbures polygonaux. Nous reviendrons sur ces observations au chapitre V sur la nuance N2.

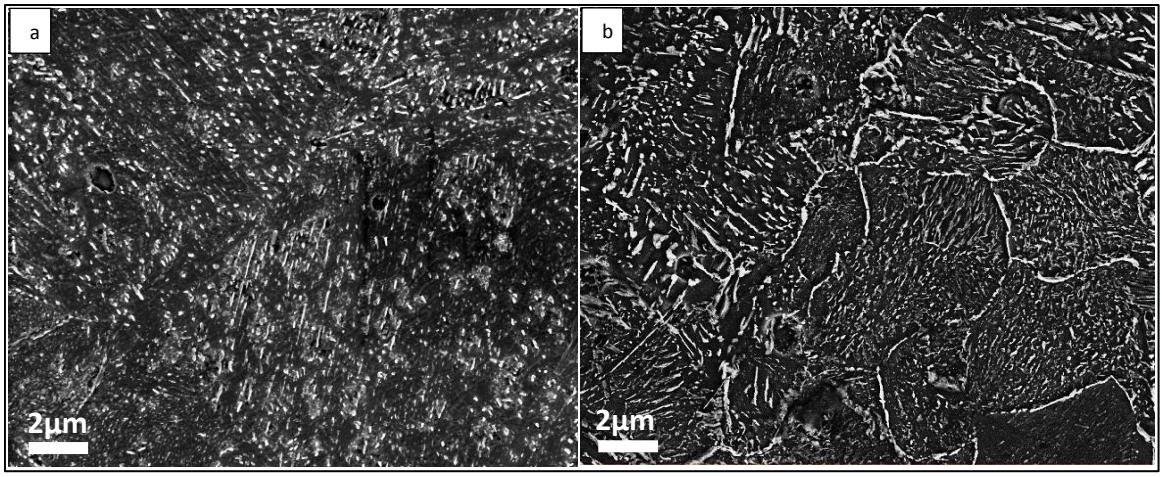


Fig.IV.9 : Nuance 1: Micrographies MEB (SE) après attaque chimique des échantillons (a) BHT (80s à 410°C) et (b) BHT-ST-1 (200s à 410°C) révélant les carbures en contraste clair.

Ce phénomène de maturation des carbures avec précipitation des formes filmogènes dessinant les joints de domaines bainitiques n'a jamais été évoqué dans la littérature à notre connaissance. Les études sur le comportement des carbures lors de « revenus » bainitiques mettent uniquement en évidence le processus de grossissement et une éventuelle sphéroïdisation (cf. Chap. I. § IV.2.5) [3-5].

Concernant l'évolution de la taille des carbures au sein des domaines bainitiques décomposés, on notera aussi que les cinétiques d'évolution semblent très rapides par rapport aux observations de la littérature. Par exemple, Nam [6] observe dans un acier Fe-0.45%C-0.22%Si-0.62%Mn-0.004%P-0.0038%S, des évolutions significatives de la microstructure de carbures à 700°C qu'après 2h (soit pour un paramètre de H_{HJ} de 19.75 très supérieur à notre cas). La figure IV.10. montre leurs micrographies MEB après attaque des structures bainitiques après trempe (a) et vieillissements à 700°C de 5 min, 30 min, 2h, 10 et 50 h respectivement.

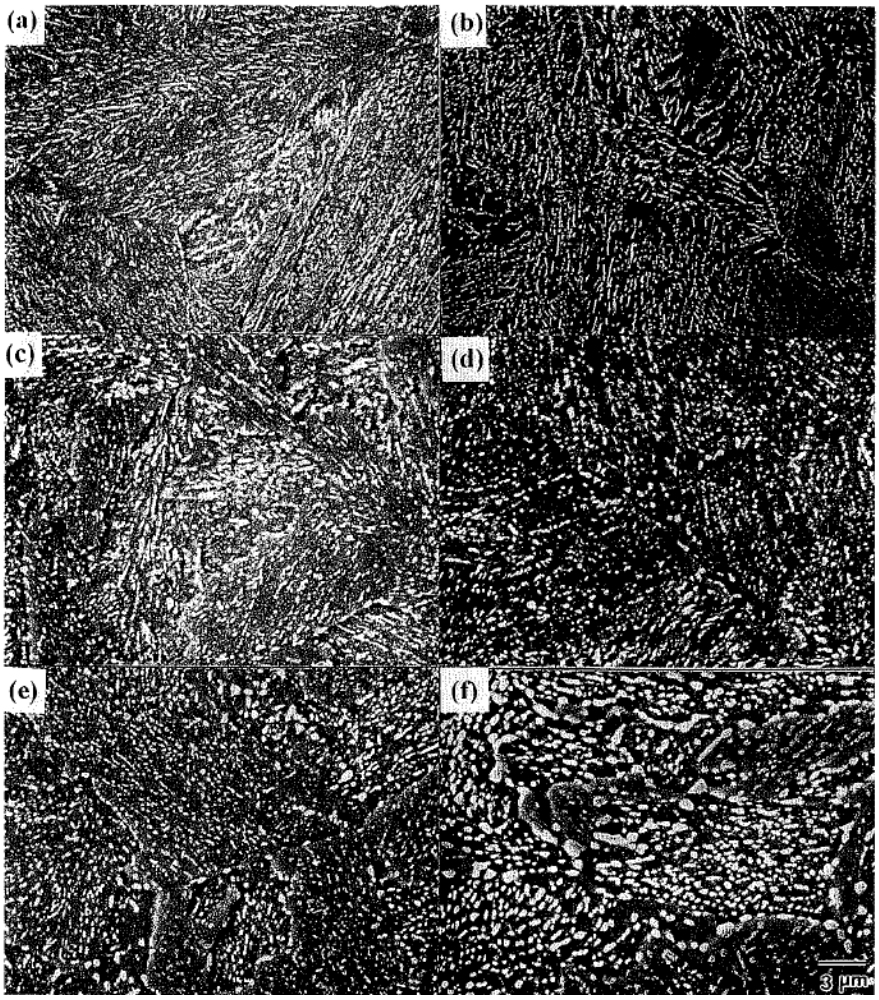


Fig.IV.10: Micrographies MEB en SE après attaque chimique (a) d'acier bainitique après transformation et (b-f) après vieillissement à 700°C de 5 min, 30 min, 2h, 10 et 50 h respectivement. Ces résultats sont tirés de [6] et ont été obtenues sur un acier Fe-0.45%C-0.22%Si-0.62%Mn-0.004%P-0.0038%S.

En conclusion, nous avons donc observé que notre microstructure BHT pouvait être particulièrement instable lors d'un maintien isotherme à la température de transformation (410°C). Pour des durées courtes (H_{HJ} < 13,5), on observe une évolution très significative de la matrice ferritique vers une structure granulaire. Les joints de fortes ou faibles désorientations dans ces paquets sont consommés dans cette réaction. Elle s'accompagne d'un processus de maturation des carbures (grossissement et précipitation filmogène). Dans la suite, nous qualifierons cet ensemble de processus de « **Granularisation** ». Nous allons maintenant essayer de mieux comprendre les conditions d'apparition de ce processus.

II. Effet de la température du maintien sur l'évolution des deux microstructures bainitiques BBT et BHT

Nous venons de mettre en évidence qu'une bainite en latte mixte peut significativement évoluer sur des temps très courts à sa température de transformation. A contrario, une bainite inférieure semble très stable à basse température alors qu'elle se décompose à haute température. On peut donc légitimement soupçonner que cette différence de comportement soit uniquement liée à la température de sur-transformation par l'intermédiaire d'un mécanisme thermiquement activé, indépendamment de la microstructure d'origine.

Nous avons donc étudié l'effet de la température de maintien sur la décomposition des microstructures bainitiques BBT ou BHT. Cette étude a été réalisée spécifiquement sur l'acier N1 pour lequel nous avions déjà les évolutions les mieux documentées et principalement par EBSD.

II.1 Effet de l'augmentation de la température de maintien pour la BBT

Dans un premier temps, nous avons étudié le vieillissement en condition isotherme d'une BBT à des températures plus élevées que sa température de transformation fixée à 340°C (voir Tab. IV.1). En condition de sur-transformation à 340°C, nous n'avions observé aucune évolution notable de la microstructure. Analysons à présent les échantillons BBT-ST-2 à 4. Ils ont respectivement subi un maintien isotherme après transformation à 340°C, de 30 min à 360°C, de 5 h à 360°C et de 30 min à 380°C (avec des valeurs du paramètre H_{HJ} variant de 12,5 à 13,1).

Notre résultat montre qu'aucune décomposition significative n'a pu être mise en évidence après vieillissement de ces échantillons à des températures supérieures à 340°C. Cela est montré par la figure IV.11; elle présente les cartographies EBSD de désorientations des échantillons BBT-ST-2 (a), BBT-ST-3 (b) et BBT-ST-4 (c) ainsi que les histogrammes de désorientations correspondant (d). Les trois histogrammes sont en effet confondus. Nous n'avons malheureusement pas pu étudier une condition vieillie à 410°C pendant 870 s pour pouvoir se comparer strictement à l'échantillon BHT-ST-2 (410°C/950s). Toutefois, nous avons atteint des sévérités de vieillissement identique au sens de Hollomon-Jaffe. Sur l'échantillon BHT-ST-2 (410°C/950s) des évolutions sont déjà observées pour des valeurs de 12,8.

On notera que la dureté a diminué après le vieillissement à 360°C tout comme nous l'avions déjà observé à 340°C. Aux erreurs expérimentales près, la diminution est sensiblement égale ce qui laisse supposer que les mécanismes envisageables sont les mêmes (restauration de la matrice ferritique et grossissement des carbures).

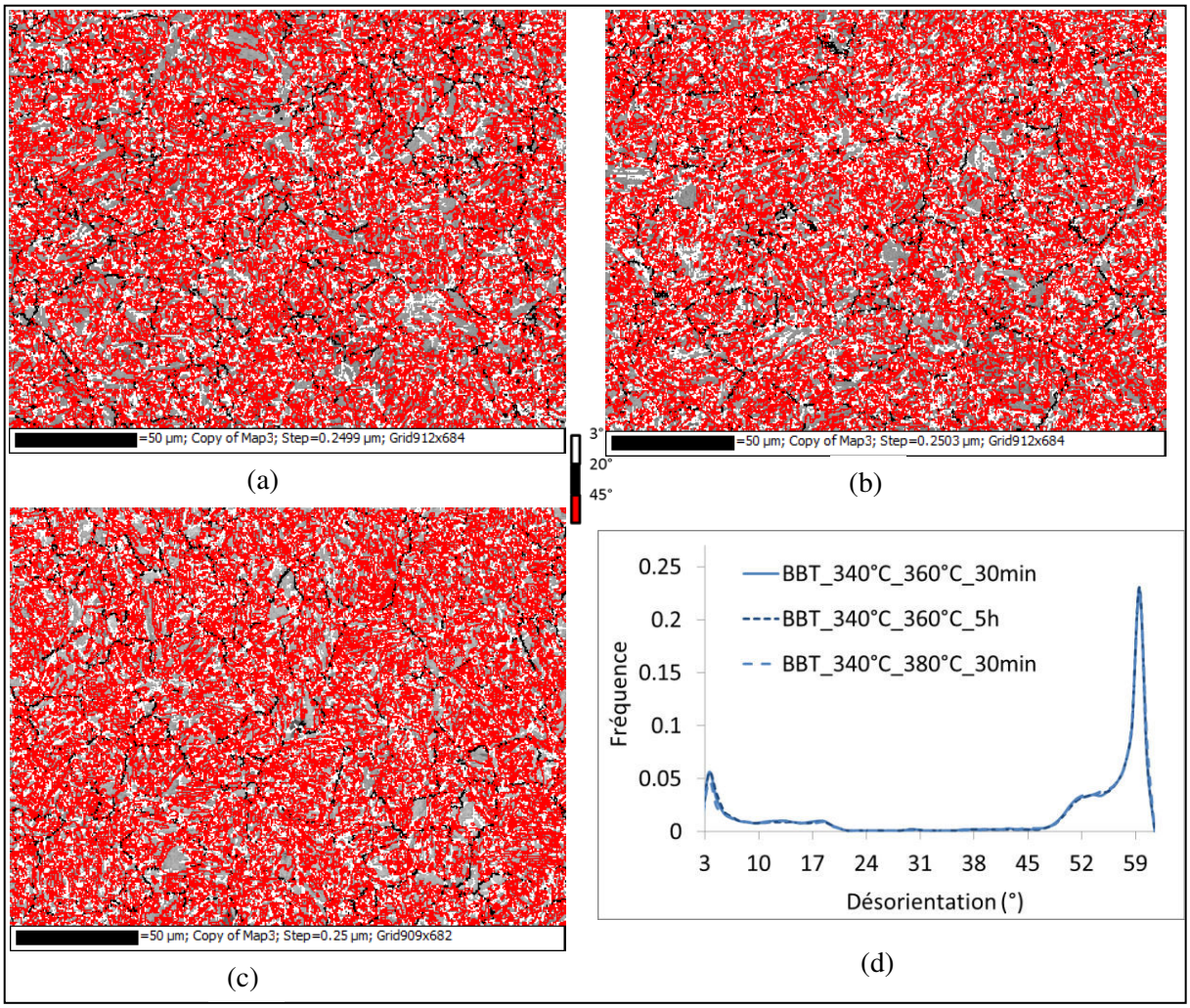


Fig.IV.11: Nuance 1: Cartographies EBSD de désorientations angulaires (le code de couleur est indiqué sur la figure) des échantillons BBT-ST-2 (sur-transformé à 360°C/30 min), (b) BBT-ST-3 (sur-transformé à 360°C/5 h) et (c) BBT-ST4 (sur-transformé à 380°C/30 min) et les histogrammes de désorientations correspondant (d)

II.2 Effet de la diminution de la température du maintien sur la bainite BHT

Dans un second temps, nous avons étudié le vieillissement en condition isotherme d'une BHT (Nuance N1) à des températures plus basses que sa température de transformation. La microstructure bainitique formée à 410°C au bout de 80s a été maintenue ensuite à 340°C pendant 870s (il s'agit de l'échantillon BHT-ST-3 du tableau IV.1). Les Figures IV.12.a et b présentent respectivement une cartographie EBSD de la microstructure après vieillissement et la reconstruction des grains austénitiques correspondant par Merengue 2.

Il apparait très clairement que le phénomène de décomposition des lattes a commencé même à cette température relativement basse (340°C, c'est à dire Ms+15°C) et sur des temps courts (H_{HJ} = 11.8). Le taux de reconstruction de l'austénite mère est faible (25%). L'histogramme de désorientation de la figure IV.12.c illustre cette décomposition avec une baisse remarquable du pic à 60° comparable à celle de la BHT-ST-2 (sur-transformée à 410°C). Les joints de blocs fortement désorientés sont donc devenus largement minoritaires. Toutefois, les joints faiblement désorientées persistent plus dans cette microstructure que lors du maintien à plus haute température.

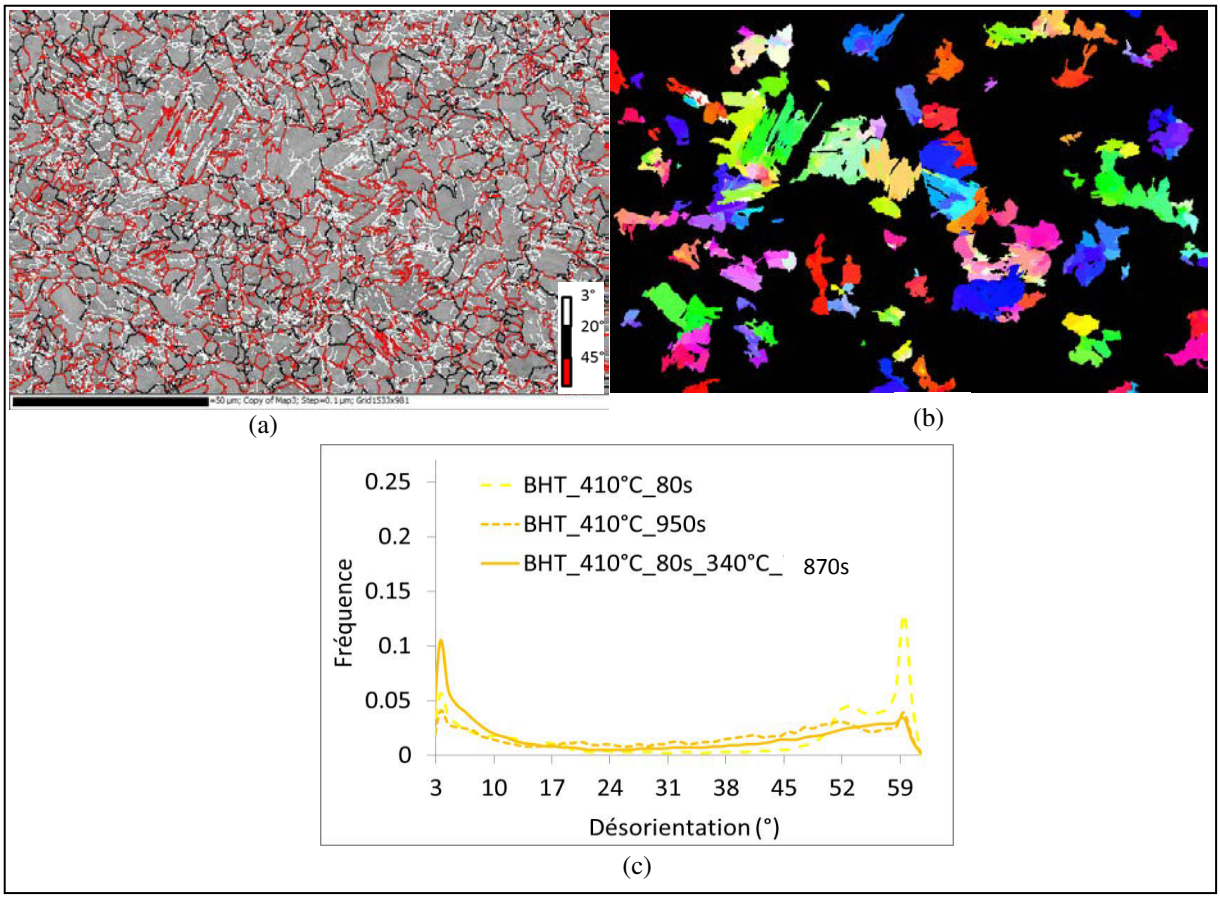


Fig. IV.12 : Nuance N1: (a) Cartographies EBSD de désorientations angulaires pour l' échantillon BHT-ST-3 (transformé à 410°C/80s et vieilli à 340°C/870s). (b) Reconstruction des anciens grains austénitiques par MERENGUE2 du même champ. (c) Histogrammes de désorientations angulaires des échantillons BHT (transformé à 410°C/80s), BHT-ST-2 (sur-transformé à 410°C/950s) et BHT-ST-3.

III. Discussion

III.1. Condition de granularisation

En conclusion, ce résultat montre que la sévérité du vieillissement au sens du paramètre de Hollomon-Jaffe n'est certainement pas le facteur déterminant le processus de décomposition de la microstructure ferritique avec la disparition des blocs de morphologies aciculaires et formation des domaines granulaires. Il apparait que la microstructure initiale joue un rôle bien plus prépondérant et que la présence de bainite supérieure est indispensable pour déclencher le processus. Une bainite inférieure seule, et probablement une martensite seule, ne « granularise » pas lors de maintiens isothermes peu sévères. C'est un des résultats clef de ce travail de thèse, résultat que nous allons approfondir au chapitre V.

Ces expériences nous ont aussi permis de montrer que l'on pouvait obtenir des vieillissements morphologiques et cristallographiques des aciers à des températures aussi basses que 340°C et des sévérités bien inférieures à celles attendues dans la littérature (pour des paramètres de H_{HJ} de l'ordre de 11.8 au lieu de 18).

III.2. Quantification du niveau de décomposition de la matrice ferritique

Les microstructures en lattes sont susceptibles de se décomposer sur des temps courts pour évoluer vers des structures grossières et polygonales que l'on peut qualifier de granulaires. La

figure IV-6 en particulier montre que les microstructures peuvent montrer des avancées différentes dans le processus de granularisation.

Pour quantifier l'avancement de la réaction de granularisation en fonction du temps, c'est-à-dire sa cinétique, nous avons dans les chapitres II et III, fait appel implicitement à la notion de taux de reconstruction des PAGS. Le taux de décomposition est égal à 100 moins le taux de reconstruction. En fait, une zone est non reconstruite lorsqu'elle ne présente pas assez de variants localement pour trouver des fragments de grains parents dans une tolérance angulaire faible. Par conséquent, un domaine granularisé qui ne contient plus un nombre suffisant de blocs dans son environnement proche et/ou pour lequel l'orientation moyenne n'est plus en RO stricte avec ces blocs, n'est plus reconstruit. Cette approche donne des résultats proches des estimations déduites manuellement, indépendamment de la carte EBSD considérée (elle donne notamment un résultat coïncidant à plus de 80% au comptage manuel, mais qui n'est pas forcément plus rigoureux). Il s'agit pour nous de la méthode de référence. La figure IV.13 présente une superposition de la carte reconstruite de la BHT-ST-1 (Nuance 1) et d'une sélection manuelle sur la carte EBSD d'origine des zones que nous avons considérées (à l'œil) non granularisées.

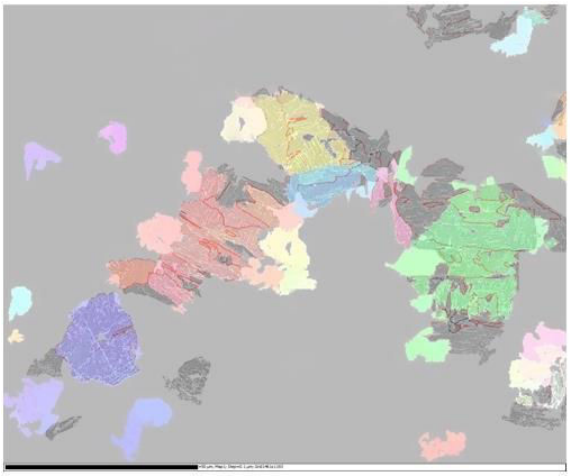


Fig.IV.13 : Superposition (avec plus de 80% de recouvrement) de la carte reconstruite à 28% de la BHT-ST-1 de la nuance N1 (couleur aléatoire) et de la carte correspondant à une sélection manuelle des zones non-granulaires sur la carte EBSD d'origine (en gris et qui couvre 23% de la carte d'origine).

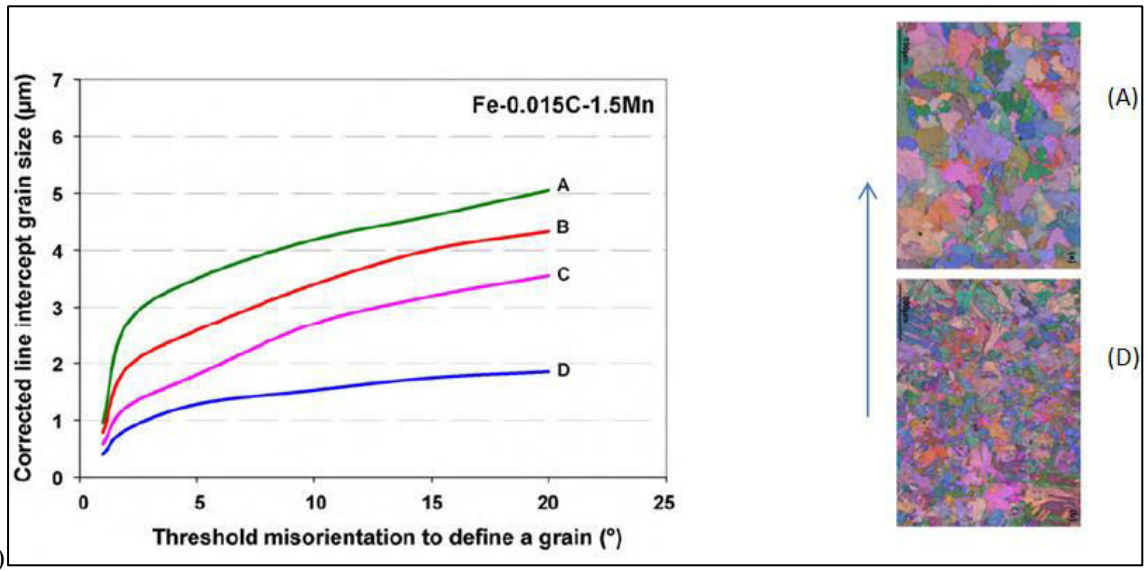
Sans logiciel de post-traitement, d'après notre analyse de la littérature, il n'existe aucun autre critère reconnu permettant de faire cette mesure du taux de granularisation. Des travaux de Zaefferer et al. [7] ont certes proposé un critère pour localiser et quantifier la bainite dans une structure contenant aussi de la ferrite. Les auteurs se basent sur la présence de GND's induites par les mécanismes de transformation dans la bainite et leur absence dans la ferrite. Ils arrivent à l'aide de l'exploitation des cartographies EBSD/KAM (Kernel Average Misorientation) à différencier les deux produits de transformation et ceci en déterminant la valeur seuil moyenne du KAM qui sépare le plus efficacement les domaines appartenant à chaque phase. Or, le phénomène de granularisation que nous observons donne un produit final complexe avec différentes configurations de réseaux de désorientations et des zones granulaires non séparés par un joint de fortes désorientations avec la zone en latte en cours de décomposition. Par conséquent cette approche n'est pas adaptée à notre microstructure.

Des travaux de Zhu et al. [8] s'inscrivant dans l'étude de l'effet de taille des lattes sur la limite d'élasticité de la bainite, utilisent une représentation des tailles de grains en fonction de l'angle de désorientation ($l_0 = f(\theta)$) pour établir un lien entre l'évolution des propriétés du

matériau et celle de la taille des grains de la structure. Ces travaux mettent en évidence une évolution des courbes $l_0 = f(\theta)$ correspondantes à plusieurs microstructures, allant d'une bainite en lattes fines vers une bainite granulaire. La figure IV.14.a montre que ces courbes ont une allure qui croit rapidement entre 1° et 5° et qui peut être assimilée à une droite pour les désorientations >5°. La pente de cette partie linéaire varie en fonction de la microstructure : elle augmente quand on passe d'une bainite en lattes (D) vers une bainite granulaire (A). La figure IV.14.b montre un exemple des courbes obtenues par l'application de cette méthode pour notre nuance N2, où nous notons bien cette augmentation de la pente avec le passage d'une structure bainitique en lattes vers une structure bainitique granulaire.

Ces travaux pourront servir de référence pour développer à l'avenir une approche robuste pour le suivi et la quantification de la fraction granulaire.

(a)



(b)

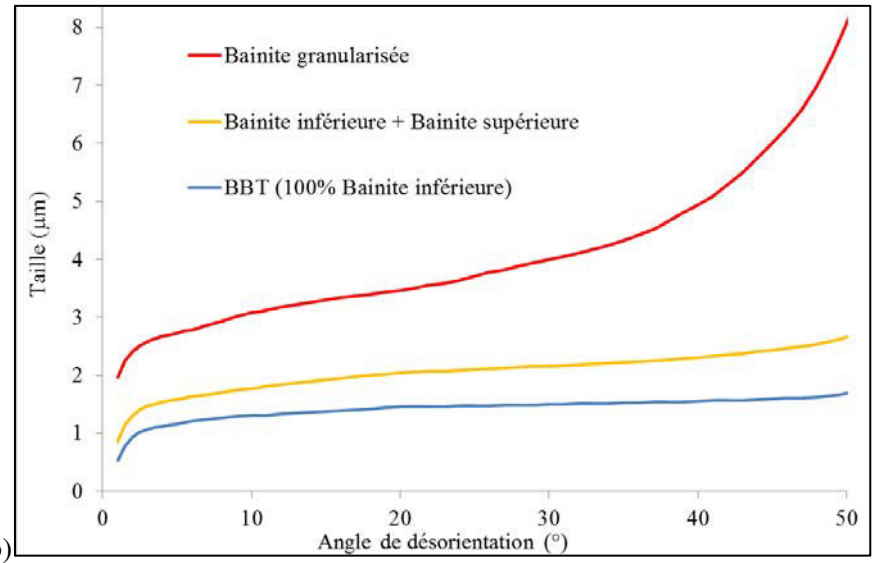


Fig. IV.14: Variation de la taille de grains (l_0) en fonction de l'angle critique de désorientation(θ) définissant un grain, pour l'acier Fe–0.015C–1.5Mn à différentes microstructures bainitiques allant de la plus fine (D) à la plus grossière (A) [8].

IV. Conclusions

Pour les nuances étudiées :

- Nous avons prouvé que les microstructures bainitiques basses températures (correspondant à des bainites inférieures) et martensitiques ne subissent aucune évolution morphologique ni microtexturale quand elles sont soumises à des maintiens isothermes de vieillissement pour les bainites (même à des températures supérieures à leurs températures de transformation), ou des revenus (à Ms+15°C) pour les martensites.
- En revanche, les microstructures bainitiques formées à haute température (de type bainite supérieure ou mixte -bainite supérieure/inférieure) font état d'une évolution remarquable lorsqu'elles sont maintenues en sur-transformation ou même à plus basse température. Elles se décomposent rapidement vers une structure granulaire.
- Ce processus de décomposition agit sur la matrice ferritique en faisant disparaître, au sein des paquets, tous les joints de blocs (fortement désorientés) présentant principalement une morphologie aciculaire et les joints de lattes (faiblement désorientées). Ce processus est déclenché par la présence de bainite supérieure et affecte toute la microstructure, même la partie présentant une microtexture de type bainite inférieure. Un déroulement en deux étapes est soupçonné et va être confirmé dans le prochain chapitre.
- Une maturation des carbures a été mise en évidence en parallèle avec l'évolution de la matrice ferritique, et consiste en la précipitation de films de carbures sur les joints de grains de bainite décomposée.
- La combinaison des deux processus de décomposition des lattes et de maturation des carbures définit la « granularisation ».
- Ce phénomène est accompagné par une chute de la dureté.

V. Références

[1] K.J. Irvine and F. B. Pickering, JISI 187, 1957, 292-309.
[2] H. Bhadeshia, Bainite in Steels 2001.
[3] R. Honeycombe and H. K. D. H. Bhadeshia: Steels, Microstructure and Properties, Arnold. London, 1995, 131.
[4] Y. Ohmori. H Ohtani and T. Kunitake: Met. Sci., 8, 1974, 357.
[5] G. Deepand W. M. Williams: C7. Metall. Q., 14, 1975, 85.
[6] W.J. Nam, ISIJ International, 39, 1999, 1181-1187.
[7] S. Zaefferer, P. Romano & F. Friedel Journal of Microscopy, 230, 2008, 499-508
[8] K. Zhu, O. Bouaziz, C. Oberbillig, M. Huang, Materials Science and Engineering A 527, 2010, 6614-6619.

Chapitre V : Granularisation des structures Bainitiques Mixtes en maintien isotherme long _ Cinétiques et Mécanismes

I. Granularisation des microstructures mixtes 155
I.1. Décomposition de la matrice ferritique 155
I.1.1. Sur-Transformation de la microstructure BMIXTE (Nuance N1) 156
I.1.2. Sur-Transformation de la microstructure BMIXTE (Nuance N2) 159
I.1.3. Revenu de la microstructure B-M (Nuance N1) 162
I.2. Maturation des carbures 163
I.2.1. Evolutions globales comparées en MEB 165
I.2.2. Etude structurale des carbures en MET 165
I.2.3. Etude de la chimie des carbures en MET 166
I.3. Synthèse 167
I.3.1. Etapes respectives de décomposition des bainites supérieures et inférieures 168
I.3.2. Lien entre maturation et décomposition 170
I.3.3. Effet de la composition nominale 170
II. Etude *in situ* de la granularisation des microstructures BMIXTE par DRXHE 170
II.1. Phases en présence 171
II.2 Cinétiques de transformation bainitique 172
II.3 Sursaturation en carbone 175
II.4 Evolution du paramètre de déformation et de la densité de dislocations 178
II.4.1. Etude *in situ* sur les nuances N1 et N2 178
II.4.2. Etude *post mortem* sur la nuance N2 180
II.5 Conclusion intermédiaire 181
III. Mécanismes de disparitions des joints de fortes désorientations 182
III.1. Mécanisme de type SIBM 182
III.2. Mécanisme de type « régression » 184
IV. Conclusion du chapitre 188
V. Références 189

Introduction

Dans le chapitre précédent, il a été montré que les microstructures en lattes peuvent subir un phénomène de dénaturation en condition de maintien isotherme à basse température. Cette dénaturation dépend fortement des microstructures initiales. En effet, dans le cas d'une microstructure entièrement martensitique ou bainitique inférieure (de type B), aucune dénaturation majeure n'est observée quelle que soit la température du maintien étudiée (au-dessus de Ms, pas avant des paramètres de Hollomon-Jaffe de 13.5 en tout cas). Par contre, lorsqu'il s'agit d'une microstructure entièrement ou partiellement bainitique supérieure (nos BHT), un phénomène de granularisation est observé au bout d'un temps relativement court (< 30 min) et même à des températures plus basses que celles de leur formation (i.e. proche de Ms pour des paramètres de Hollomon-Jaffe aussi petit que 11.8). Le phénomène de granularisation consiste en une décomposition des lattes (disparition des joints de blocs et de sous-blocs au sein des paquets) et une maturation des carbures (grossissement, sphéroïdisation et précipitation inter-granulaire). Le produit final consiste en une structure granulaire contenant des films de carbures inter-grains et quelques particules intra-granulaires de forme sphéroïdale. Cet état final est atteint plus ou moins rapidement en fonction de la température de maintien et de la composition de l'acier.

Ce dernier chapitre est consacré à l'étude des mécanismes mis en jeu lors de ce phénomène de granularisation. Nous confirmerons dans un premier temps que la présence d'une fraction de bainite supérieure (de type A) est nécessaire pour le déclenchement de la décomposition des lattes dans les structures de type B. Pour cette démonstration, nous avons imaginé et produit des microstructures initiales mixtes modèles, composées de bainite haute température (BHT) et basse température (BBT) que nous avons appelées BMIXTE ou bien de bainite haute température (BHT) et de martensite (M) que nous avons appelées B-M. Ces microstructures ont ensuite été revenues ou sur-transformées. Pour la nuance N1, les microstructures BMIXTES ou B-M sont parfaitement contrôlées et obtenues par des traitements étagés en dilatométrie alors que pour la nuance N2 elles sont produites lors d'un refroidissement continu en bains de sels (cf. chapitre II § II.3).

Le tableau V.1 récapitule les traitements thermiques et échantillons que nous avons étudiés dans ce chapitre.

(a)

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)[8]
BMIXTE	410°C / 25s + 340°C / 570s	315
B-M	410°C / 25s + trempe	400
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BMIXTE-ST-1	410°C / 25s + 340°C / 30 min	305
BMIXTE-ST-2	410°C / 25s + 340°C / 5h	273
B-M-R	410°C / 25s + trempe + 340°C / 5h	352

[8] Les mesures de dureté ont été effectuées sur un microduromètre Zwick-Roell/Indentec, à 1/4 de l'épaisseur de l'échantillon pour éviter les hétérogénéités et les défauts au centre et les décarburations aux bords. La valeur indiquée correspond à la moyenne d'une filiation de dix mesures.

(b)

Echantillons après transformation	Traitement Thermique Température / Temps	Dureté (HV)
BMIXTE	Refroidissement Continu + 380°C / 50s	265
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	
BMIXTE-ST-1	Refroidissement Continu + 380°C / 10min	248
BMIXTE-ST-2	Refroidissement Continu + 380°C / 30min	221
BMIXTE-ST-3	Refroidissement Continu + 380°C / 5h	218

Tab.V.1: Traitements thermiques réalisés et dénominations des échantillons correspondants sur les deux nuances modèles (a) N1et (b) N2 (Echantillons en Bain de Sel).

Dans la première partie de ce chapitre, nous montrerons que dans des structures BMIXTE (pour les nuances N1 et N2) contenant une fraction significative de bainite supérieure de type A, la décomposition du mélange commence avant 30 min de maintien isotherme à la basse température (T_{BBT} soit Ms + 15°C). Pour suivre ce processus, nous utiliserons principalement des analyses EBSD et analyses couplées EBSD/Merengue2 comme dans les chapitres précédents. Ensuite, nous nous intéresserons à la maturation des carbures dans ces structures sur-transformées. Cette étude a principalement été réalisée en MET pour des questions de résolution mais aussi pour caractériser leurs structures cristallographiques et leurs compositions chimiques. Nous déduirons de l'ensemble de ces résultats une possible représentation de l'enchainement des processus de granularisation à l'échelle d'un paquet, en distinguant structures de type A ou de type B. Ces résultats suggèrent aussi l'existence d'un couplage entre décomposition de la matrice ferritique et maturation des carbures.

La seconde partie de ce chapitre présente les résultats de nos expériences en DRXHE sur lignes de lumière synchrotron pour étudier les processus de transformation et de sur-transformation des microstructures BMIXTE (nuances N1 et N2). L'objectif avoué de cette étude était non seulement de pouvoir mesurer en temps réel les transformations de phases (fraction, composition) mais aussi de suivre les processus de restauration dans la bainite. En effet, nous espérions mettre en évidence une corrélation entre diminution de la densité de dislocations et processus de granularisation. Nos expériences *in situ* et *post mortem* ont bien mis évidence une diminution systématique et rapide des densités de dislocations lors des sur-transformations, mais indépendamment de l'état de décomposition de la structure ferritique. Ce résultat prouve toutefois que la disparition des joints de fortes désorientations observée dans les structures de type B n'est pas corrélée directement à cette densité de défauts.

Suite à ce constat, nous suggérerons dans une troisième partie deux mécanismes possibles pouvant expliquer cette disparition de joints dans les structures de type B sur la base d'observations *post mortem* en MEB/EBSD. Le premier, le moins fréquent, consisterait en un processus de type SIBM, nécessitant un contact entre bainite de type A et structure de type B. Le second, que nous avons appelé mécanisme de « régression », est basé sur l'hypothèse que nos structures mixtes le sont aussi à l'échelle des paquets. Autrement dit, qu'il existerait un variant commun dans ces paquets mixtes entre bainite de type A et structure de type B. Dans ce cas, nous montrerons que les variants minoritaires sont soumis à une forte pression et peuvent régresser facilement. Ce processus conduit donc à une conversion d'une structure B en une structure A.

I. Granularisation des microstructures mixtes

I.1. Décomposition de la matrice ferritique

Comme vu au chapitre III, la microstructure BBT de la nuance de N1 est constituée de 100% bainite inférieure (type B) et la microstructure BHT contient 70% de bainite supérieure (type A) et 30% de bainite inférieure (type B). Pour la nuance N2, la microstructure BBT est constituée également de 100% de bainite inférieure et la microstructure BHT se compose de 84% de bainite supérieure et de 16% de bainite inférieure. En un sens, les microstructures BHT sont déjà mixtes. Comme les fractions de bainites supérieures dans les microstructures BHT nous semblaient trop élevées pour étudier le processus de granularisation de la bainite inférieure, nous avons décidé de produire des microstructures modèles à fraction de bainite supérieure plus faible et contrôlée (inférieure à 35%).

La microstructure bainitique initiale BMIXTE de la nuance de référence N1 a été obtenue par un traitement thermique spécifique en dilatomètre. Celui-ci consiste à former 50% de bainite BHT par transformation isotherme à T_{BHT} = 410°C pendant 25 s et 50% de bainite BBT à T_{BBT} = 340°C jusqu'à la fin de transformation, atteinte au bout de 570 s. Par une simple loi de mélange, on peut s'attendre à ce que la microstructure contienne 35% de bainite supérieure et 65% de bainite inférieure. Nous confirmerons ce résultat par une analyse DECRYPT.

Pour la nuance N2, la microstructure initiale BMIXTE a été obtenue par un refroidissement continu avec une vitesse permettant de former de la bainite supérieure, puis par un palier isotherme pendant 50 s à T_{BBT} pour former la bainite inférieure. Ce temps de traitement à T_{BBT} a été déterminé à partir d'une analyse préalable en dilatométrie. La détermination des fractions exactes de bainite supérieure et de bainite inférieure n'a été possible qu'après analyse de la microtexture par Merengue2/DECRYPT. Il s'est avéré toutefois que la microstructure mixte obtenue était déjà partiellement décomposée contenant 28% de bainite supérieure, 48% de bainite inférieure et 24% de bainite « décomposée » de morphologie équiaxe (taux de granularisation de 24%). Cette microstructure est donc bien mixte au final, avec une fraction élevée de bainite inférieure en lattes comme espérée, mais plus complexe que dans le cas N1.

Ensuite, les états sur-transformés à T_{BBT} respectivement pendant 30 min et 5h, ont été analysés pour chaque nuance par rapport aux microstructures initiales. Ces traitements thermiques correspondent à des paramètres de Hollomon-Jaffe H_{HJ} de 12 et 12.7 pour les BMIXTE-ST1 et BMIXSTE-ST2 de la nuance N1, et 12.8 et 13.5 pour les BMIXTE-ST2 et BMIXSTE-ST3 de la nuance N2. A l'instar des conditions étudiées au chapitre IV, nous avons observé dans les deux cas une décomposition claire des structures bainitiques inférieures.

Comme les microstructures bainitiques inférieures et martensitiques présentent de nombreuses similarités, nous nous sommes intéressés dans un troisième temps à une microstructure mixte bainite supérieure / martensite obtenue avec la nuance N1. Cette microstructure modèle est obtenue par la formation de bainite BHT par transformation isotherme à T_{BHT} = 410°C pendant 25 s (comme BMIXTE finalement) suivie d'une trempe rapide jusqu'à la température ambiante, pour compléter la microstructure avec de la martensite. La microstructure attendue est donc constituée de 35% bainite supérieure, 15% de bainite inférieure et 50% de martensite.

I.1.1. Sur-Transformation de la microstructure BMIXTE (Nuance N1)

La figure V.1 montre les cartographies EBSD de désorientations associées respectivement aux microstructures BMIXTE initiales (Fig.V.1.a), BMIXTE-ST1 sur-transformées pendant 30 min (Fig.V.1.b) et BMIXTE-ST2 sur-transformées pendant 5 h (Fig.V. 1.c). La fraction des joints de blocs de la microtexture initiale, représentés en rouge, diminue progressivement entre les trois états. L'histogramme des désorientations angulaires de la figure V.1.d correspondant confirme ce constat car on observe une diminution du pic à 60° de 0.23 pour l'état initial à 0.17 pour l'état sur-transformé pendant 30 min, puis à 0.14 pour l'état sur-transformé pendant 5 h. Ces deux résultats confirment avec certitude une décomposition des lattes de la bainite inférieure, alors que cette bainite est normalement stable à T_{BBT}.

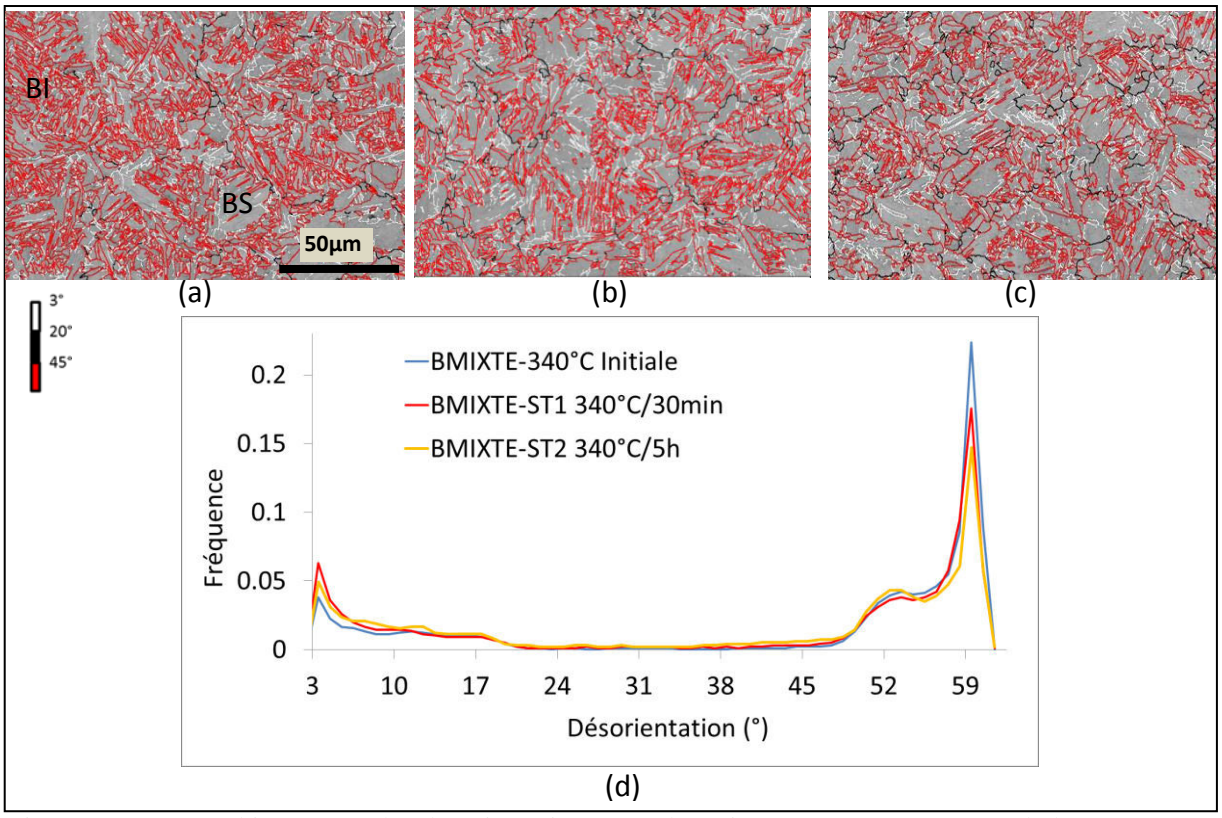


Fig.V.1 : Cartographies EBSD des désorientations pour les microstructures BMIXTE de la nuance N1 (a) initiale transformée à 410°C puis à 340°C jusqu'à la fin de transformation (b) BMIXTE-ST1 sur-transformée à 340°C pendant 30 min et (c) BMIXTE-ST2 sur-transformée à 340°C pendant 5h. (d) Histogrammes de désorientations angulaires tronqués à 3° des trois microstructures.

Les figures V.2.a, b et c montrent les cartes EBSD associées aux trois mêmes microstructures en représentant cette fois-ci les très petites désorientations jusqu'à 0.5° ; ceci pour mettre en évidence les joints de sous-blocs (en blanc) caractérisant les domaines de bainite supérieure. Cette représentation permet de bien distinguer bainite supérieure en lattes de type A et bainite « décomposée » granulaire ne contenant que très peu de sous-joints.

Les figures V.2.d, e, et f montrent les reconstructions par MERENGUE2 des mêmes champs que les figures a, b et c respectivement. La microstructure BMIXTE initiale a pu être entièrement reconstruite. Par contre, pour celle après sur-transformation pendant 30 min, le taux de reconstruction est de 98% et après 5h, le taux de reconstruction est seulement de 85%. Nous remarquons que les zones non-reconstruites (en noir) correspondent aux domaines cristallographiques sans joints de blocs ni de sous-blocs et délimités par des joints irréguliers (bainite « décomposée »). Dans la plupart des cas, ces zones non reconstruites montrent des

désorientations aléatoires (des exemples sont encadrés en pointillés sur la figure V.2.c). Ces domaines ont des tailles variant de 5 à 10 µm. Ces valeurs ne dépassent pas la taille moyenne des paquets de la BBT déterminée au chapitre III (cf. Tableau § IV).

L'organisation spatiale des variants au sein des PAGs a été ensuite déterminée à l'aide de l'analyse DECRYPT. La microstructure BMIXTE initiale comporte 30% de paquets contenant au plus 3 blocs et 70% contenant un nombre de blocs ≥4. Ce résultat signifie que 30% de la microstructure est de type A, caractéristique de la bainite supérieure, au sens du chapitre III § III.5. Les 70% restant sont de type B donc de type bainite inférieure. Ces valeurs sont cohérentes avec nos estimations préalables des fractions des deux bainites supérieure et inférieure dans la microstructure (35% et 65% respectivement). Pour la microstructure BMIXTE sur-transformée pendant 30 min, l'analyse DECRYPT montre une évolution significative de ces valeurs : 40% de microstructure de type A pour 60% de type B. Ceci est corrélé à la disparition de 10% des joints de blocs fortement désorientés, correspondant à la baisse du pic à 60° de l'histogramme (Fig V.1.d.) Enfin, pour la microstructure BMIXTE sur-transformée pendant 5h, le pourcentage du type A augmente pour atteindre 50%. Ceci signifie qu'une fraction supplémentaire des joints de blocs a disparu.

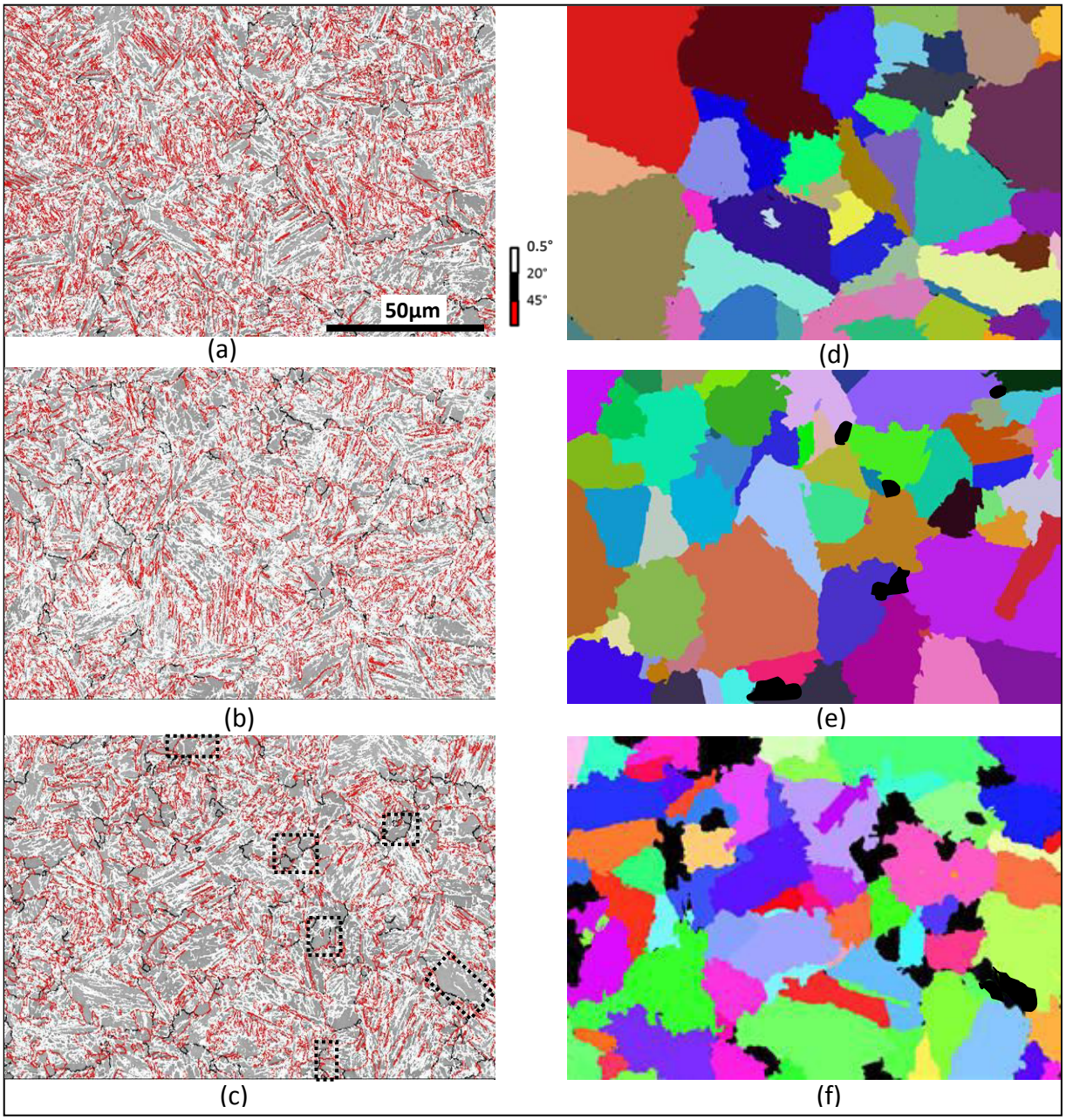


Fig.V.2 : Cartographies EBSD de désorientations représentant les joints jusqu'à 0.5° pour les microstructures BMIXTE de la nuance N1 (a) initiale transformée à 410°C puis à 340°C jusqu'à la fin de transformation (b) BMIXTE-ST1 sur-transformée à 340°C pendant 30 min et (c) BMIXTE-ST2 sur-transformée à 340°C pendant 5h. (d), (e) et (f) Cartes reconstruites par MERENGUE2 des microstructures austénitiques mères correspondantes.

En conclusion, la matrice ferritique de la BMIXTE obtenue pour la nuance N1, se décompose rapidement à basse température. Elle présente un taux de granularisation de 15% pour un paramètre de Hollomon-Jaffe de 12.7 (à 340°C en 5h). Nos analyses couplées MERENGUE2 et DECRYPT montrent que les fortes désorientations caractéristiques de la bainite inférieure (de type B avec des joints à 60°) disparaissent au profit de zones faiblement désorientées, structures semblables à de la bainite supérieure (augmentation de la fraction de type A). En parallèle, les structures de type A disparaissent au profit de domaines exempts de joints (bainite « décomposée »).

I.1.2. Sur-Transformation de la microstructure BMIXTE (Nuance N2)

Les traitements thermiques sur la nuance N2 ont été réalisés en bains de sels. La microstructure BMIXTE initiale de la nuance N2 a été obtenue par refroidissement continu pour former de la bainite supérieure suivi d'un maintien isotherme à 380°C pour former de la bainite inférieure. Cette dernière transformation est supposée finie après 50 s, comme pour l'échantillon BBT (résultat obtenu en dilatométrie). Il est en effet difficile de suivre ou de simuler les transformations lors de recuit en bains de sels. De façon arbitraire, nous considèrerons donc que la microstructure bainitique à 50 s est notre microstructure initiale.

La figure V.3 montre une cartographie ESBD de cette microstructure initiale ainsi que la microstructure austénitique mère reconstruite du même champ. Sur la carte EBSD nous observons la présence de plusieurs « grains » polygonaux, exempts de sous-joints, qui n'ont pas été reconstruits sur la carte austénitique. Le taux de reconstruction est seulement de 76%. Comme expliqué au chapitre II, à partir de l'enregistrement de la température lors du traitement thermique, nous pensons que la transformation ferritique pro-eutectoïde n'est pas possible (ce que nous confirmerons aussi dans la seconde partie de ce chapitre par nos expériences *in situ*). Les zones non reconstruites sont donc pour nous la preuve que le processus de décomposition des structures en lattes a déjà commencé même dans la microstructure initiale (tout comme dans l'échantillon BHT, juste transformé à 470°C en 20 s décrit au chapitre IV § I.2).

D'après les résultats de l'analyse DECRYPT, la partie encore en lattes de cette microstructure est constituée de 36% de bainite de type A et 64% de type B. Ceci revient donc, par rapport à la totalité des données analysées, à 28% de bainite de type A, 48% de bainite de type B et 24% de bainite « décomposée » de morphologie équiaxe.

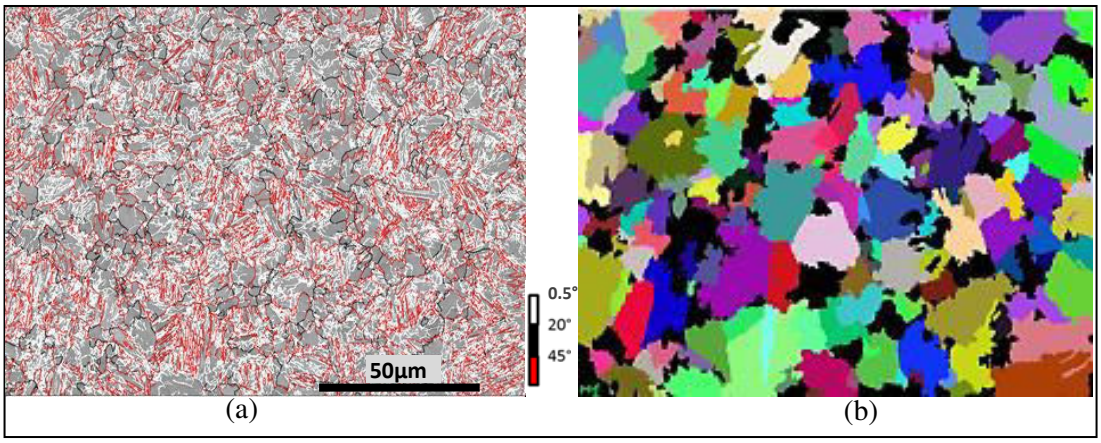


Fig.V.3 : (a) Cartographie EBSD mettant en évidence les joints de désorientations pour la microstructure initiale BMIXTE sur la nuance N2. (b) Carte reconstruite par MERENGUE2 de la microstructure austénitique mère correspondante.

Tout comme pour la nuance N1, deux temps de sur-transformation de 30 min et 5 h, ont été considérés pour étudier les évolutions de la microstructure initiale. La figure V.4 montre les cartes des désorientations (a,b) et les cartes reconstruites des microstructures austénitiques mères (c,d) associées à ces deux états de sur-transformation.

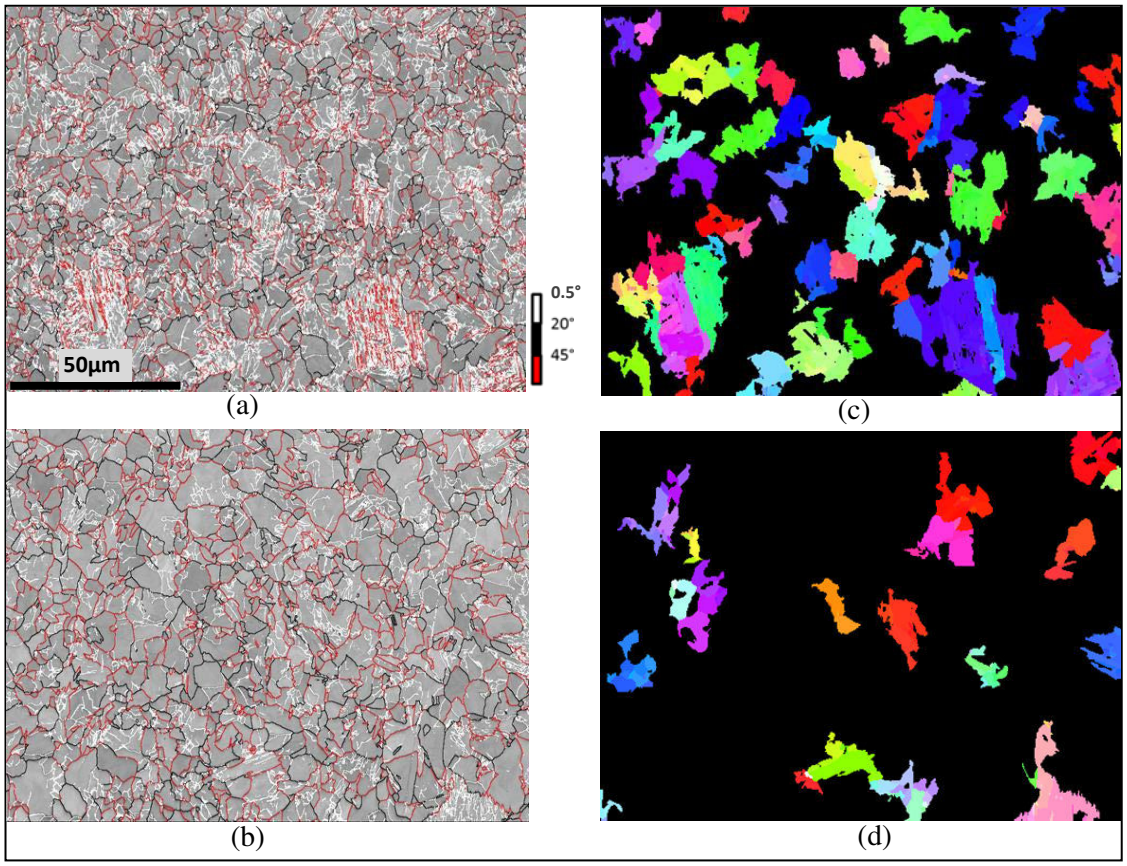


Fig.V.4 : Cartographies EBSD de désorientations pour les microstructures de la nuance N2, BMIXTE-ST2 et -ST3 et cartes reconstruites par MERENGUE2 des microstructures austénitiques mères correspondantes. Etats sur-transformées à 380°C (a,c) pendant 30 min et (b,d) pendant 5h respectivement.

Nous observons une évolution très remarquable de la microstructure. La cartographie EBSD de la figure V.4.a montre que les domaines en lattes (contenant des joints blancs ou rouges rectilignes) sont très restreints après sur-transformation de 30 min, par rapport à l'état initial (Fig.V.3.a). En dehors de ces zones, les grains deviennent polygonaux. La matrice apparait donc de plus en plus « granulaire ». La reconstruction avec MERENGUE2 de la figure V.4.c donne d'ailleurs un taux de reconstruction faible de seulement 39%. Quand le traitement de sur-transformation est prolongé jusqu'à 5h, les zones en lattes sont entièrement décomposées et sont remplacées par des structures granulaires comme le montre la figure V.4.b. D'après la reconstruction correspondante de la figure V.4.d, uniquement 10% de la microstructure a gardé sa morphologie en lattes.

La figure V.5 montre les histogrammes des désorientations angulaires associés aux cartographies EBSD des figures V.4 et V.3 précédentes. Leur étude comparée permet de quantifier les évolutions observées de la microtexture. La valeur du pic à 60°, caractéristique des joints de blocs, chute d'une valeur de 0.17 pour la microstructure initiale, à 0.09 après un maintien de 30 min puis à 0.04 après 5 h. Cette diminution traduit la disparition des joints de blocs au cours de la sur-transformation. Par ailleurs, nous remarquons que la proportion de joints avec une désorientation aléatoire (i.e. entre 20° et 45°) augmente progressivement, en cohérence avec nos observations précédentes.

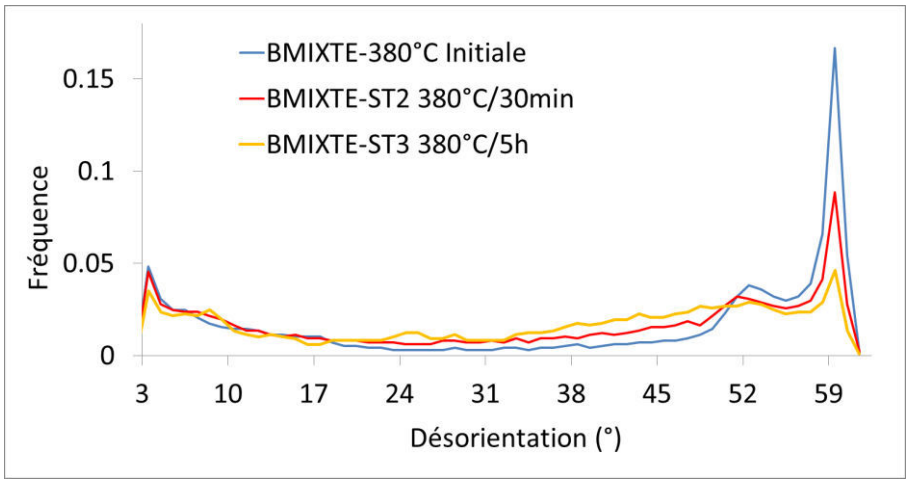


Fig.V.5 : Histogrammes superposés des désorientations angulaires tronqués à 3° associés aux trois microstructures : BMIXTE initiale (bleu), BMIXTE-ST2 sur-transformée à 380°C pendant 30 min (rouge) et BMIXTE-ST3 sur-transformée à 380°C pendant 5h pour la nuance N2 (orange).

Si l'on s'intéresse maintenant aux faibles angles de 0.5° à 4.5°, la figure V.6 montre les histogrammes obtenus pour les échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST2 et BMIXTE-ST3 en résolution améliorée. On observe une forte diminution de la fraction des désorientations très faibles (i.e. inférieures à 3°) au cours du traitement de sur-transformation. Cela traduit la disparition des joints de sous-blocs et de certains sous-joints que nous observons sur les cartographies correspondantes. On s'attend aussi à une diminution de la densité de dislocations.

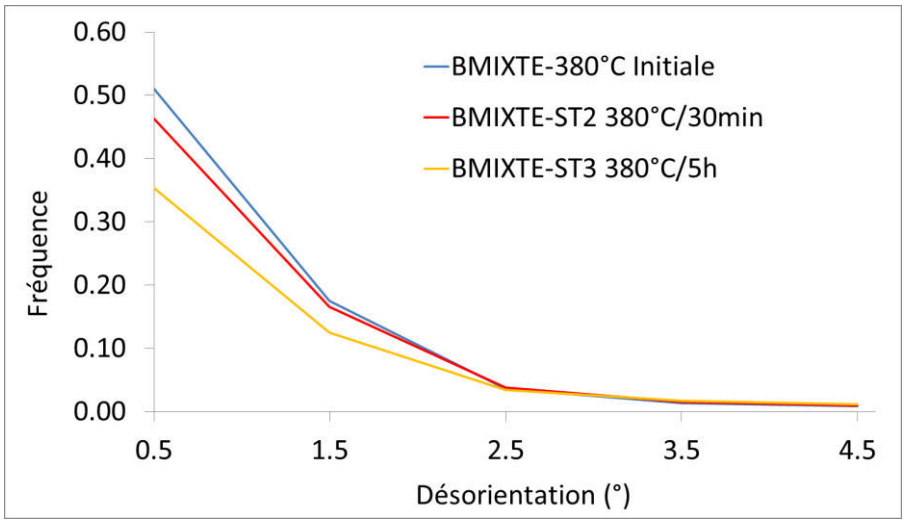


Fig.V.6 : Histogrammes superposés des désorientations angulaires aux faibles angles associés aux trois microstructures : BMIXTE initiale (bleu), BMIXTE-ST2 sur-transformée à 380°C pendant 30 min (rouge) et BMIXTE-ST3 sur-transformée à 380°C pendant 5h pour la nuance N2.

L'analyse DECRYPT sur les fractions reconstruites des deux structures sur-transformées, montre qu'au bout de 30 min de sur-transformation à 380°C, la fraction en lattes de la microstructure contient 60% de paquets à moins de 3 blocs, donc de type A. Ceci signifie que la microstructure de départ (qui était constituée de 28% de bainite de type A, 48% de bainite de type B et 24% de bainite « décomposée ») est maintenant constituée de 23.5% de bainite de type A, 15.5% de bainite de type B et 61% de bainite décomposée. La sur-transformation jusqu'à 5h donne une microstructure majoritairement décomposée (90%) dont le reste est de type A (9%). La structure de type B, fortement désorientée, a donc complètement disparue.

Cette étude sur la nuance N2 montre que la microstructure ferritique BMIXTE obtenue en refroidissement continu se décompose aussi très rapidement. Elle présente un taux de décomposition de 10% initialement et puis de 90% pour un paramètre de Hollomon-Jaffe de 13.5 (à 380°C en 5h). On retrouve des mécanismes similaires avec une disparition des joints de blocs (joints à 60°) et apparition de domaines exempts de joints (bainite décomposée).

I.1.3. Revenu de la microstructure B-M (Nuance N1)

La figure V.7 montre les cartographies EBSD de désorientations (Fig.V.7.a) et la reconstruction de l'austénite mère correspondante par MERENGUE2 (Fig.V.7.c) de la microstructure initiale (B-M). Celle-ci a été obtenue par maintien bainitique à 410°C pendant 25 s pour former 50% de BHT suivie d'une trempe. Par une simple loi de mélange, on peut alors estimer que la microstructure initiale brute de trempe est alors constituée de 35% de bainite supérieure, de 15% de bainite inférieure et de 50% de martensite fraîche. Or en pratique, il est très difficile comme nous avons pu le montrer au chapitre III, de distinguer bainite inférieure et martensite. On s'attend donc à pouvoir étudier une microstructure constituée environ de 35% de bainite supérieure de type A et 65% de bainite/martensite de type B. Nous avons pu en effet reconstruire la totalité de la microstructure par MERENGUE2 et l'analyse DECRYPT a permis de confirmer que la structure est bien composée de 32% de bainite de type A et de 68% de structure de type B.

Après revenu à 340°C pendant 5 h, la microstructure présente une diminution remarquable du nombre des joints de blocs comme on peut l'observer sur la cartographie EBSD de la figure V.7.b. La figure V.7.e présente l'histogramme de désorientation correspondant. Quantitativement, on observe une baisse significativement de la fréquence des joints à 60° de 0.23 à 0.15. Cette chute est très similaire à celle observée pour BMIXTE-ST3 sur la figure V.1.

Par ailleurs, la reconstruction de l'austénite mère de la microstructure revenue (Fig V.7.d) montre que le taux de reconstruction atteint est de 75%. 25% de la microstructure est donc décomposé en 5h à 340°C. Dans la partie reconstruite, le pourcentage de microstructure de type B est tombé à 45%.

En conclusion, cette étude sur la nuance N1 montre que la matrice ferritique de la microstructure B-M, composée de bainite supérieure, inférieure et de martensite se décompose. Le résultat nouveau est donc que la martensite se comporte de la même façon que la bainite inférieure en présence de bainite supérieure ; seule, elle est stable (cf. chapitre IV) dans ces mêmes conditions de revenu. Elle présente un taux de granularisation de 25% pour un paramètre de Hollomon-Jaffe de 12.7 (à 340°C en 5h).

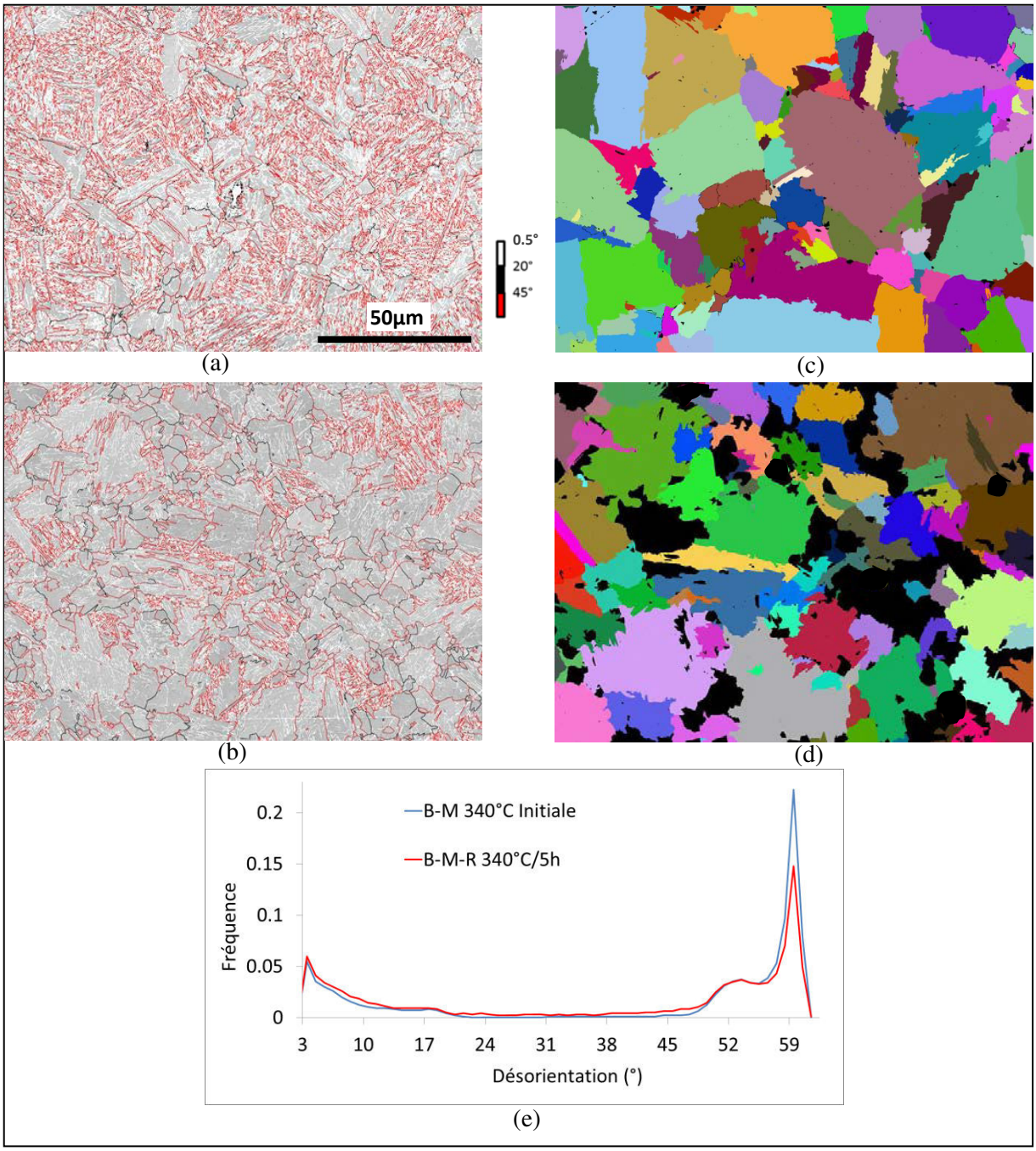


Fig.V.7: Cartographies EBSD de désorientations pour les microstructures B-M et B-M-R de la nuance N1 et cartes reconstruites de l'austénite mère correspondantes. (a, c) état brut de trempe et (b,d) état revenu 340°C pendant 5h. (e) Histogrammes superposés des désorientations angulaires tronqués à 3° associés aux deux microstructures : B-M (bleu) et B-M-R (rouge).

I.2. Maturation des carbures

En parallèle à la décomposition de la matrice ferritique, la microstructure de carbures caractéristiques de nos aciers bainitiques, est aussi affectée par le traitement de sur-transformation. Nous avons vu par exemple au chapitre précédent que lors du maintien isotherme d'une structure BHT (cf. chapitre IV § I.2.2) où nous avons étudié en particulier celle de la nuance de référence N1), ils subissent un processus de maturation, caractérisée par une sphéroïdisation des carbures intra-lattes, un grossissement de certains carbures (coalescence) et une précipitation de carbures filmogènes sur certains joints particulier, ceux des nouvelles structures granulaires.

Dans cette section, nous présenterons tout d'abord une étude comparée en MEB des échantillons BMIXTE de la partie précédente. Nous avons mis en évidence une maturation des carbures lors de la sur-transformation de la microstructure BMIXTE de la nuance N2 et mais pas dans le cas de la nuance N1. Ce résultat surprenant révèle probablement que la maturation des carbures nécessite un certain avancement de la décomposition de la matrice ferritique. L'étude détaillée de ce couplage est une perspective intéressante de cette thèse.

Nous présenterons ensuite une étude détaillée en MET des carbures dans des microstructures granularisées, après maturation. Les résultats de diffraction montrent que les carbures observés dans nos aciers sont toujours de la cémentite. De façon plus surprenante, nous montrerons que les films observés en MEB sont en réalité des carbures isolés qui bénéficient du processus de grossissement [1]. Toutefois, la composition chimique de cette cémentite est loin de l'équilibre.

I.2.1. Evolutions globales comparées en MEB

La figure V.8 montre des micrographies MEB SE des arrangements des carbures dans les microstructures BMIXTE initiales et sur-transformées. Les figures a et b correspondent à l'étude sur la nuance N1, donc sur les échantillons BMIXTE et BMIXTE-ST2 (sur-transformés à 340°C pendant 5h). Les figures c, d et e correspondent à l'étude sur la nuance N2, donc sur les échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST2 et BMIXTE-ST3 respectivement. Les évolutions sont très différentes d'une nuance à l'autre.

Pour la nuance N1 l'arrangement des carbures inter- et intra-lattes de la microstructure obtenue juste après transformation (Fig.V.8.a) ne présente aucun changement observable qualitativement au bout de 5h de sur-transformation (Fig.V.8.b). Au contraire, les carbures dans la microstructure initiale de la N2 subissent une maturation importante ; après seulement 30 min de sur-transformation des films discontinus précipitent sur les joints des grains de bainite « décomposée» (Fig.V.8.d) et deviennent continus au bout de 5h (Fig.V.8.e). Pour ces deux derniers cas, une fraction significative des carbures conserve toutefois leurs anciennes positions dans la microstructure en lattes mais présentent des morphologies plus sphéroïdales.

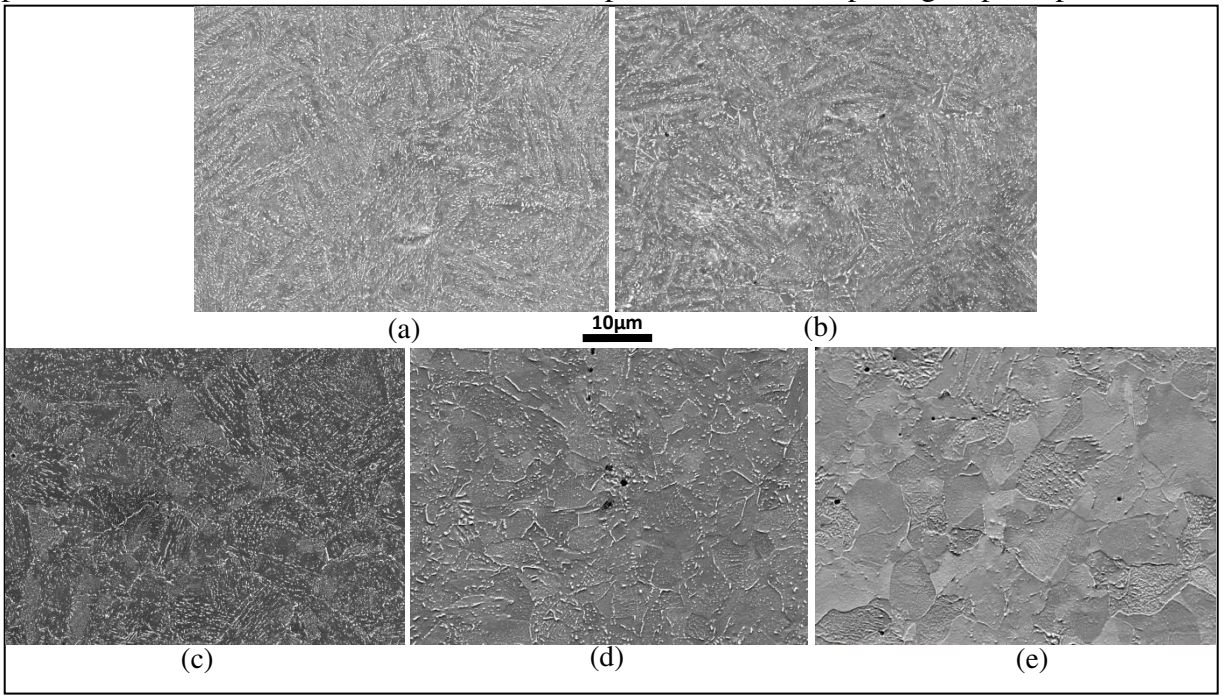


Fig.V.8 : Micrographies MEB en SE après attaque chimique des microstructures (a) BMIXTE et (b) BMIXTE-ST2 de la nuance N1 et (c) BMIXTE, (d) BMIXTE-ST2 et (e) BMIXTE-ST3 de la nuance N2 respectivement. Les carbures apparaissent en contraste clair.

I.2.2. Etude structurale des carbures en MET

Très tôt dans notre étude s'est donc posée la question de la nature de ces carbures filmogènes. En effet, ces carbures ont une morphologie inattendue après un processus de murissement pour lequel on attend plutôt une croissance privilégiée de grains sphériques à cause de l'effet Gibbs-Thomson.

L'observation en imagerie MET à haute résolution des précipités filmogènes a permis de mieux comprendre leur morphologie. La figure V.9 montre deux micrographies MET de films de cémentite observés dans la structure BMIXTE-ST2. Ces observations ont été réalisées sur répliques extractives selon le protocole détaillé au chapitre II § III.2.1. Comme déjà discuté et annoncé au chapitre IV § I.2.2, les films de carbures ne sont absolument pas monocristallins mais sont constitués de chapelets de carbures ayant germé sur un joints de paquets (ou de PAGS). Les particules sont si proches qu'elles forment un film continu si on les observe par d'autres techniques, y compris en MET sur lames minces, ce que nous allons voir par exemple sur la figure V.10.

Donc, ces films, que nous sommes les premiers à observer à notre connaissance lors d'une sur-transformation, sont en réalité constitués de carbures individuels. En conséquence, leur forme s'interprète bien dans une approche classique du mûrissement. Par contre, leur localisation signifie que les joints autour de la bainite décomposée sont des courts-circuits diffusionnels qui leur assurent une croissance rapide aux dépens des carbures inter-lattes. Ces joints de désorientation aléatoire sont probablement plus efficaces que les joints de lattes ou de blocs pour assurer la diffusion du carbone. C'est une explication possible de ce couplage entre décomposition de la matrice ferritique et précipitation filmogène des carbures.

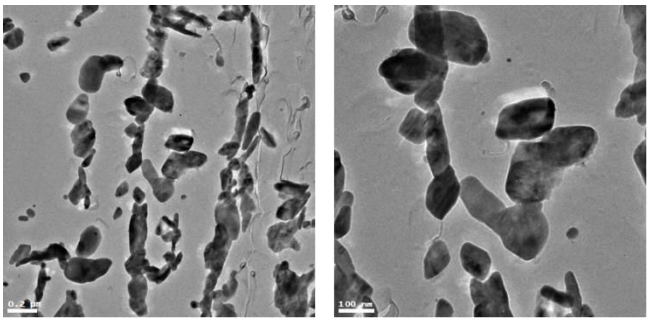


Fig.V.9 : Micrographies MET en champ clair de films de cémentite observés sur répliques extractives dans la structure BMIXTE-ST2 de la nuance N2. Les carbures apparaissent en contraste sombre.

Après cette étude basée sur l'imagerie, nous avons analysé la structure cristallographique des carbures afin de vérifier qu'il s'agissait bien de la cémentite. En effet, notre étude bibliographique du chapitre I § I.1, montre que des carbures de transition pouvaient aussi être observés dans des aciers bainitiques, mais seulement à basses températures ou pour des temps courts de transformation. Lors de maintiens prolongés au-dessus de 200°C, on retrouve presque toujours de la cémentite dans les aciers revenus. Nous n'avons pas pu mener cette étude systématiquement sur tous nos échantillons. Nous avons choisi d'étudier par contre dans le détail, la sur-transformation de la microstructure BMIXTE de la nuance N2, car elle présente un degré de maturation très avancé après 5h et différentes morphologies de carbures.

La figure V.10.a montre des micrographies MET en champ clair obtenues sur des lames minces de différents échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST2 et ST3. Les carbures apparaissent en contraste sombre. Nous avons pu observer différents types de carbures (intra, inter-lattes ou films) que nous avons repérés par des flèches. Tous les clichés de diffraction en SAED que nous avons pu obtenir sur ces carbures pouvaient s'interpréter par une structure cristalline

orthorhombique. La figure V.10.b présente des exemples de clichés de diffraction en axe de zone et qui peuvent tous correspondre à de la cémentite compte tenu des distances inter-réticulaires.

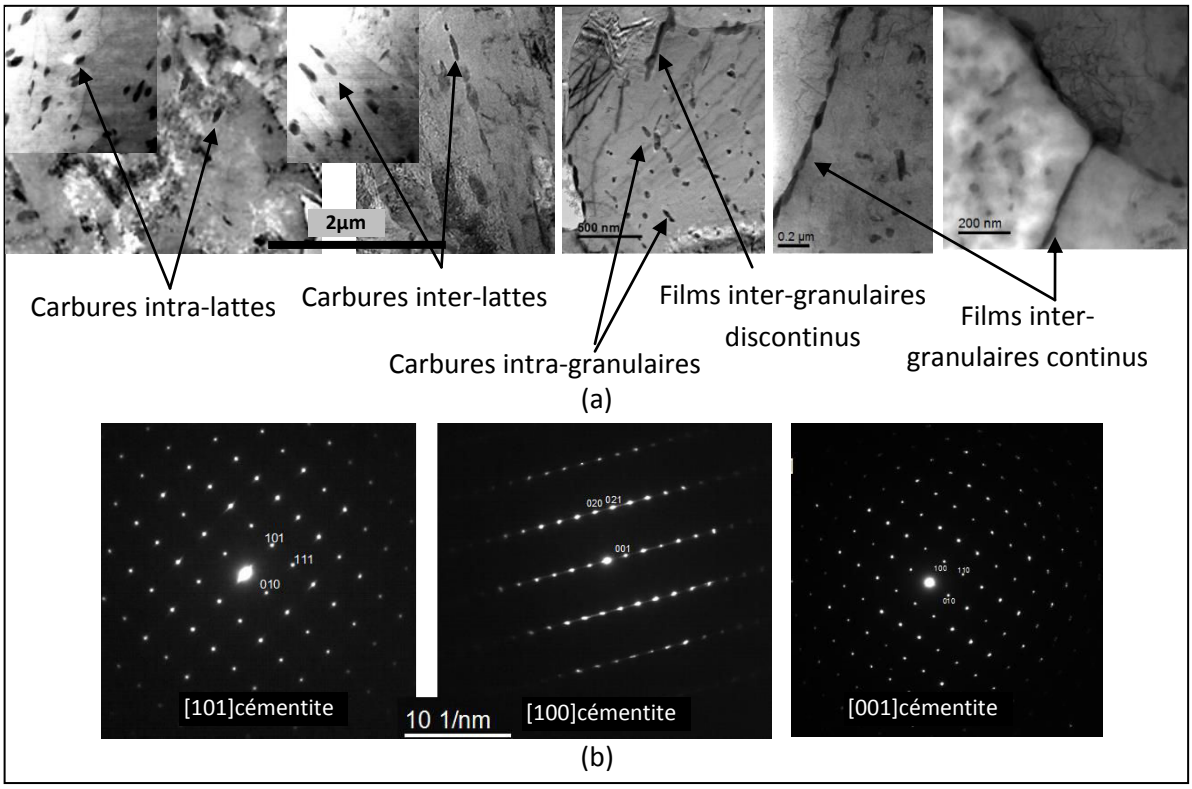


Fig.V.10 :(a) Micrographie MET en champ clair montrant les différents types de carbures observés sur les lames minces des échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST2 et ST3 de la nuance N2. (b) Familles de clichés ponctuels obtenus pour les carbures analysés et indexés comme des axes de zone de la cémentite [100], [001] et [101].

En conclusion, cette étude structurale des carbures en microscopie électronique à transmission nous a permis

- de confirmer que les carbures que nous avons observés dans nos alliages sont probablement toujours de la cémentite
- d'expliquer la morphologie et la localisation des films de carbures observés en MEB dans nos alliages après granularisation.

I.2.3. Etude de la chimie des carbures en MET

La seconde question que nous nous sommes posée sur le processus de maturation est si celui-ci conduisait à une évolution de la composition chimique de la cémentite. En effet, notre étude bibliographique révélait que les carbures se forment lors de la transformation initiale en condition de paraéquilibre. Autrement dit, la u-fraction en nickel de la cémentite dans la microstructure BMIXTE initiale doit correspondre à la composition nominale de l'austénite. Par contre, lors de la maturation de la cémentite on peut s'attendre que la composition des carbures évolue comme attendu par le modèle de Bhadeshia détaillé au chapitre I § IV.2.5. La figure V.11 montre les résultats d'un calcul Thermocalc réalisé par Julien Texeira (base TCFE7) montrant une coupe isotherme à 380°C du diagramme de phase ternaire FeNiC dans le coin riche en fer. D'après ce calcul, en considérant la conode d'équilibre du système, on s'attend que la composition en nickel dans la cémentite soit de l'ordre de 2% et proche de la composition nominale dans la ferrite (BCC_A2).

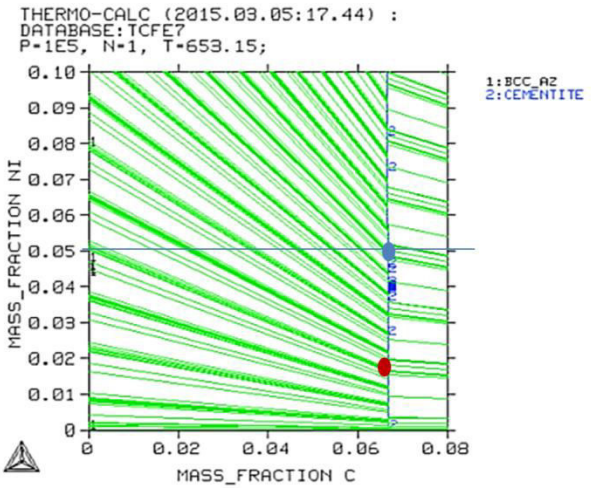


Fig.V.11 : Une coupe isotherme à 380°C du digramme de phase ternaire FeNiC dans le coin riche en fer. Résultat d'un calcul Thermocalc (base TCFE7) réalisé par Julien Texeira. Le point rouge indique la composition attendue de la cémentite.

Des analyses EDS au MET ont été réalisées sur les répliques des trois microstructures BMIXTE, BMIXTE-ST2 et BMIXTE-ST3 de la nuance N2. Le tableau V.2 montre la statistique des mesures de u-fractions massiques en nickel dans les carbures. La figure V.12 montre les micrographies MET en champ clair des zones analysées pour ces mesures. Les carbures apparaissent en contraste sombre et les croix bleues montrent la position des points d'analyses EDS.

	BMIXTE	BMIXTE-ST2	BMIXTE-ST3
u-fraction massique en nickel (%)	microstructure initiale	sur-transformée à 380°C 30min	sur-transformée à 380°C 5h
Moyenne	5.09	5.10	4.90
Minimum	3.63	4.20	4.62
Maximum	6.07	5.75	5.27
Ecart-type	0.49	0.36	0.21

Tab.V.2 : u-fraction massique en nickel moyennes, minimales, maximales et écart-types mesurées par EDS en MET sur différents carbures dans les trois échantillons BMIXTE et BMIXTE-ST2 et ST3 de la nuance N2.

Cette analyse montre que les particules de cémentite ne changent pas de composition chimique lors du processus de maturation, en tout cas dans les conditions étudiées. La précipitation et la croissance des particules (isolées ou en films) se fait donc probablement dans des conditions thermodynamiques aux interfaces de type paraéquilibre ou LE-NP (Local Equilibrium - Negligible Partitionning). Le rejet du nickel des précipités ne limiterait pas les cinétiques ce qui pourrait expliquer les cinétiques rapides de precipitation/grossissement observées. Cette hypothèse serait cohérente aussi avec les travaux de Ghosh et Olson sur la précipitation de la cémentite lors du revenu de la martensite riche en nickel [2], et ceux de Caballero et al. [3] sur la précipitation et la maturation de la cémentite dans la bainite inférieure revenue. Une étude plus détaillée des conditions d'interface serait nécessaire pour pouvoir conclure et serait une perspective intéressante de nos travaux.

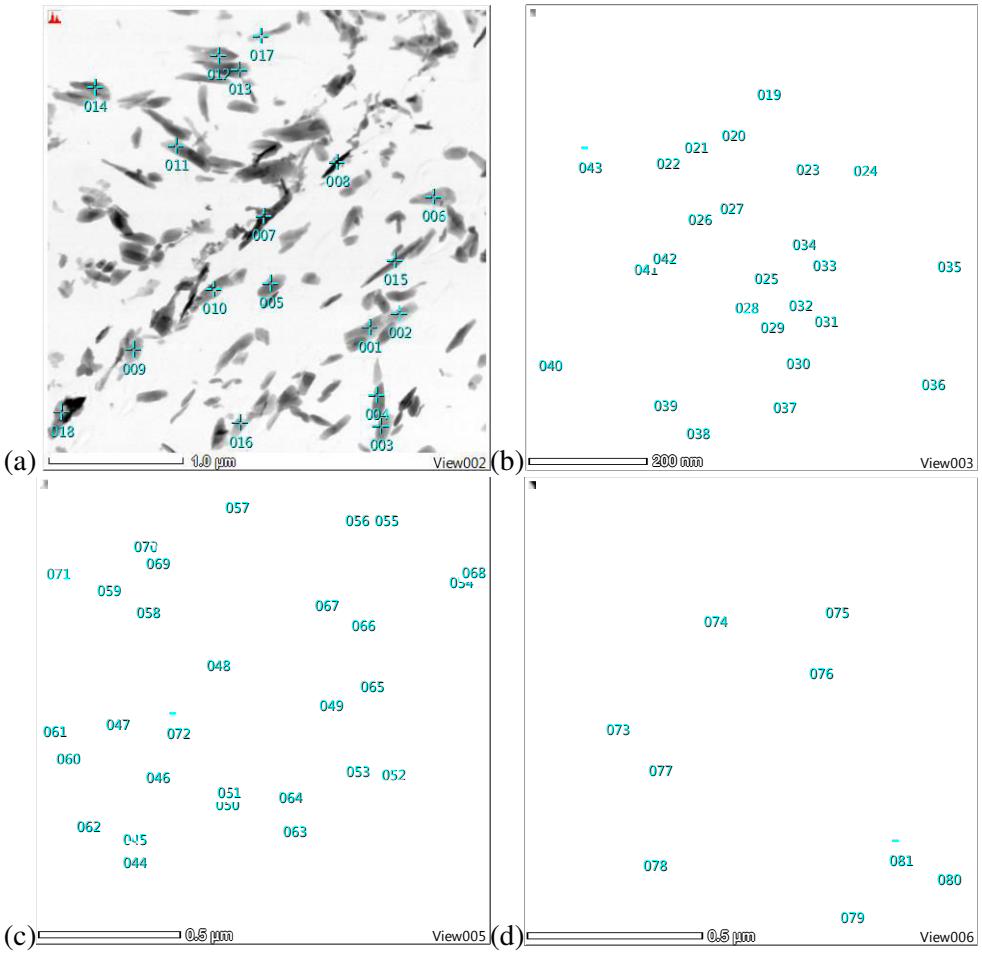


Fig.V.12 : Micrographies MET en champ clair des zones dont les carbures ont été analysés par EDS. Les carbures apparaissent en contraste sombre. Les croix bleues indiquent les points analysés. (a) Microstructure BMIXTE, (b) BMIXTE-ST1 et (c,d) BMIXTE-ST3 de la nuance N2.

I.3. Synthèse

Dans cette partie, nous avons étudié l'évolution durant un traitement de sur-transformation des structures mixtes en lattes contenant des fractions contrôlées de bainite supérieure (de type A selon le chapitre III), de bainite inférieure et/ou de martensite (de type B). Les microstructures modèles initiales ont été obtenues sur nos deux nuances au nickel N1 (Fe-0.33%C-5%Ni) et N2 (Fe-0.13%C-5%Ni).

I.3.1. Etapes respectives de décomposition des bainites supérieures et inférieures

Comme nous avions pu le conjecturer au chapitre précédent, la présence de bainite supérieure dans la microstructure permet déclencher la décomposition de la structure en lattes à des températures auxquelles bainite inférieure et/ou martensite seules sont stables.

Dans les trois cas étudiés de BMIXTE dans ce chapitre et sur la BHT du chapitre précédent, nous avons pu observer que la décomposition de la matrice comporte deux processus majeurs :

- Disparition des joints de blocs au sein des paquets de bainite inférieure ou de martensite. Dans les zones ainsi transformées, des joints de sous-blocs persistent donnant ainsi des domaines semblables à de la bainite supérieure (en tout cas du point de vue cristallographique, de type A), car la fraction relative de structure de type A augmente.

- Apparition de zones complètement équiaxes et libres de joints de lattes/sous-blocs ; la bainite « décomposée ». Ces zones granulaires font des tailles qui ne dépassent toutefois pas la taille moyenne des paquets et qui ne peuvent être reconstruites par MERENGUE2.

Ces deux processus se déroulent en parallèle car on peut observer de la bainite décomposée granulaire et de la bainite de type B dans un même échantillon. Chaque paquet évolue donc plus ou moins individuellement avec sa propre cinétique. Il est donc difficile de déterminer avec certitude l'enchainement des mécanismes à l'échelle d'un paquet unique. A cela s'ajoute le fait que les microstructures initiales sont mixtes, contenant des mélanges de microstructures, difficile à classifier automatiquement.

Une façon d'expliquer ces observations moyennes est de considérer que la bainite inférieure et la martensite (de type B) subissent une décomposition en 2 étapes. La bainite supérieure (de type A) subit quant à elle une seule étape de décomposition. La figure IV.13 résume de manière schématique notre vision du processus de décomposition à l'échelle d'un paquet.

La décomposition de la bainite inférieure (ou martensite de type B) consiste d'abord en une conversion vers une microstructure de type A (étape 1), puis en une restauration des sous-joints (étape 2). La bainite supérieure (naturellement de type A) ne subit que le second processus pour se décomposer.

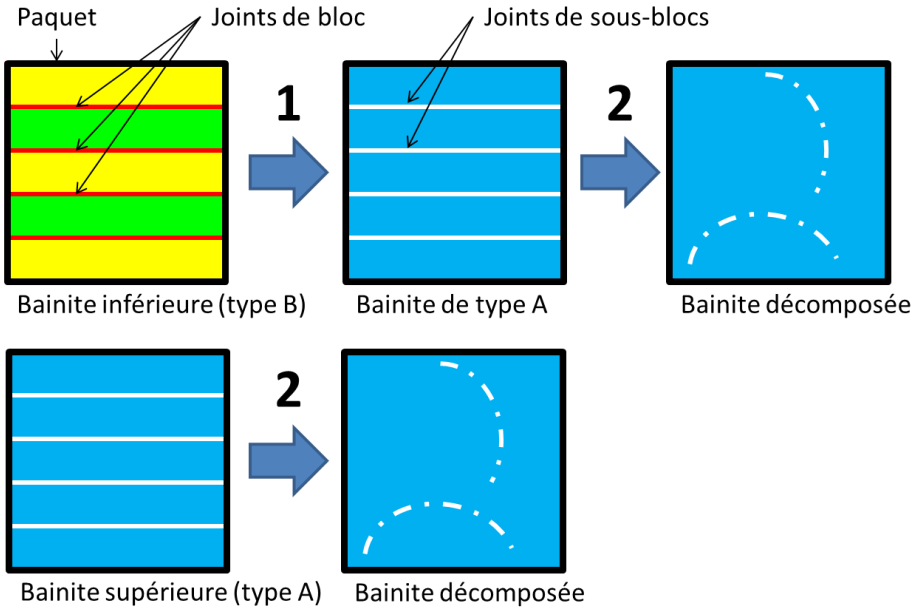


Fig.V.13 : Représentation schématique des deux étapes principales permettant d'expliquer la granularisation des bainites inférieure et supérieure à l'échelle d'un paquet.

Cette représentation est schématique car elle n'explique pas pourquoi la présence de bainite de type A dans la microstructure initiale est nécessaire pour initier globalement le processus dans la bainite de type B. Les mécanismes susceptibles d'expliquer l'étape 1 de cette décomposition de la bainite feront l'objet de la troisième section. Nous proposerons un schéma explicatif basé sur des observations fines en EBSD et en ECCI.

L'étape 2 ressemble beaucoup au processus de coalescence de lattes détaillé au chapitre I. Toutefois, le mécanisme que nous observons est plus rapide que celui attendu par le modèle de Li (migration d'un joint de faible désorientation par montée).

I.3.2. Lien entre maturation et décomposition

En parallèle de cette décomposition de la matrice ferritique, nous observons une maturation de la microstructure de carbures. Le phénomène le plus remarquable concernant nos aciers est l'apparition des films de cémentite aux joints des zones granulaires. Ces films sont constitués en réalité de carbures isolés et leur localisation s'explique probablement par une forte diffusivité du carbone sur ces joints. Tant que la décomposition de la matrice n'est pas avancée (présence de bainite décomposée et granulaire), ces carbures ne peuvent pas apparaitre, comme nous avons pu le voir sur nos échantillons BMIXTE-ST3 de la nuance N1. Il existe donc un lien entre l'évolution de la matrice ferritique et la maturation des carbures. Il s'agit finalement de la troisième phase de la granularisation.

En parallèle de la précipitation de ces films, les carbures intra-lattes et inter-lattes deviennent sphéroïdaux et les plus petits disparaissent progressivement (processus de grossissement). Ce processus plus classique n'est probablement pas corrélé à l'évolution de la matrice et commence une fois la microstructure formée. Il peut expliquer la baisse de dureté mesurée lors de la sur-transformation ou du revenu sur les microstructures de type B (BBT ou M) en l'absence de granularisation (cf. chapitre IV § II).

I.3.3. Effet de la composition nominale

Il est difficile avec nos expériences de démontrer quel est l'effet de la teneur en carbone des aciers sur ces processus, car les microstructures initiales sont significativement différentes d'un cas étudié à l'autre ainsi que les températures de sur-transformation ou de revenu. Toutefois, il semble que les processus soient plus rapides dans la nuance N2 (90% de granularisation pour un paramètre de Hollomon-Jaffe de 13.5 contre 25% de granularisation pour un paramètre de Hollomon-Jaffe de 12.7 pour la nuance N1). Pour pouvoir mieux étudier les cinétiques, nous avons décidé de conduire des essais in situ sur grands instruments. Ces essais nous ont apporté des informations complémentaires sur les mécanismes de décomposition, comme l'évolution de la densité de dislocations lors de la sur-transformation de nos microstructures mixtes. Ces essais font l'objet de la prochaine section.

II. Etude *in situ* de la granularisation des microstructures BMIXTE par DRXHE

Nous avons vu que la granularisation comporte trois processus importants opérant (localement) séquentiellement lors du maintien isotherme. Pour mieux comprendre les mécanismes sous-jacents, il serait intéressant de pouvoir caractériser les microstructures à de nombreuses étapes intermédiaires. Cette approche dite *post mortem* nécessite la préparation d'échantillons et des observations fines à chaque étape, et est donc très consommatrice de ressources. D'où l'intérêt des expériences *in situ* que nous avons pu réaliser sur la ligne de lumière synchrotron DESY (cf. Chapitre II. § VI). Ces expériences nous ont permis non seulement d'étudier les cinétiques de transformation bainitiques (matrice et carbures) mais aussi la restauration dans la ferrite en condition de sur-transformation. Les dispositifs expérimentaux utilisés ont été détaillés au chapitre II ainsi que la procédure de post-traitement des clichés de diffraction.

Nos expériences ont principalement consisté à reproduire les expériences de sur-transformation des microstructures BMIXTE pour les nuances N1 et N2. Nous avons choisi ces cycles particuliers car ils permettaient de mettre en évidence des processus de granularisation. Lors de ces traitements thermiques réalisés sur un dilatomètre Bähr, nous avons illuminé les échantillons et réalisé des expériences de diffraction des rayons X *in situ*. Les deux cycles thermiques en question consistent en :

- un recuit austénitique à 900°C / 5 min suivi d'un traitement thermique étagé à 410°C / 25 s puis 340°C / 2 h pour la nuance N1
- un recuit austénitique à 820°C / 5min suivi un refroidissement continu à vitesse moyenne (85°C/s jusqu'à 480°C et 30°C/s jusqu'à 380°C) puis un palier isotherme à 380°C / 2 h pour la nuance N2

Dans les deux cas étudiés, les traitements de sur-transformation sont plus courts que dans la section précédente (2 h au lieu de 5 h).

II.1. Phases en présence

Le traitement Rietveld des résultats de diffraction nécessite l'identification préalable des phases en présence pour chaque diffractogramme. La figure V.14 montre trois exemples de diffractogramme type obtenu pour différentes étapes clefs du traitement :

- Pendant l'austénitisation et le début du refroidissement (avant formation de la bainite) : seuls les pics de diffraction de l'austénite sont visibles (1 phase).
- Au début de la formation de la bainite en refroidissement et/ou au palier bainitique isotherme, avant la fin de transformation : présence à la fois des pics d'austénite, de ferrite et de cémentite (3 phases)
- Durant le maintien isotherme : seuls les pics de ferrite et de cémentite sont visibles (2 phases)

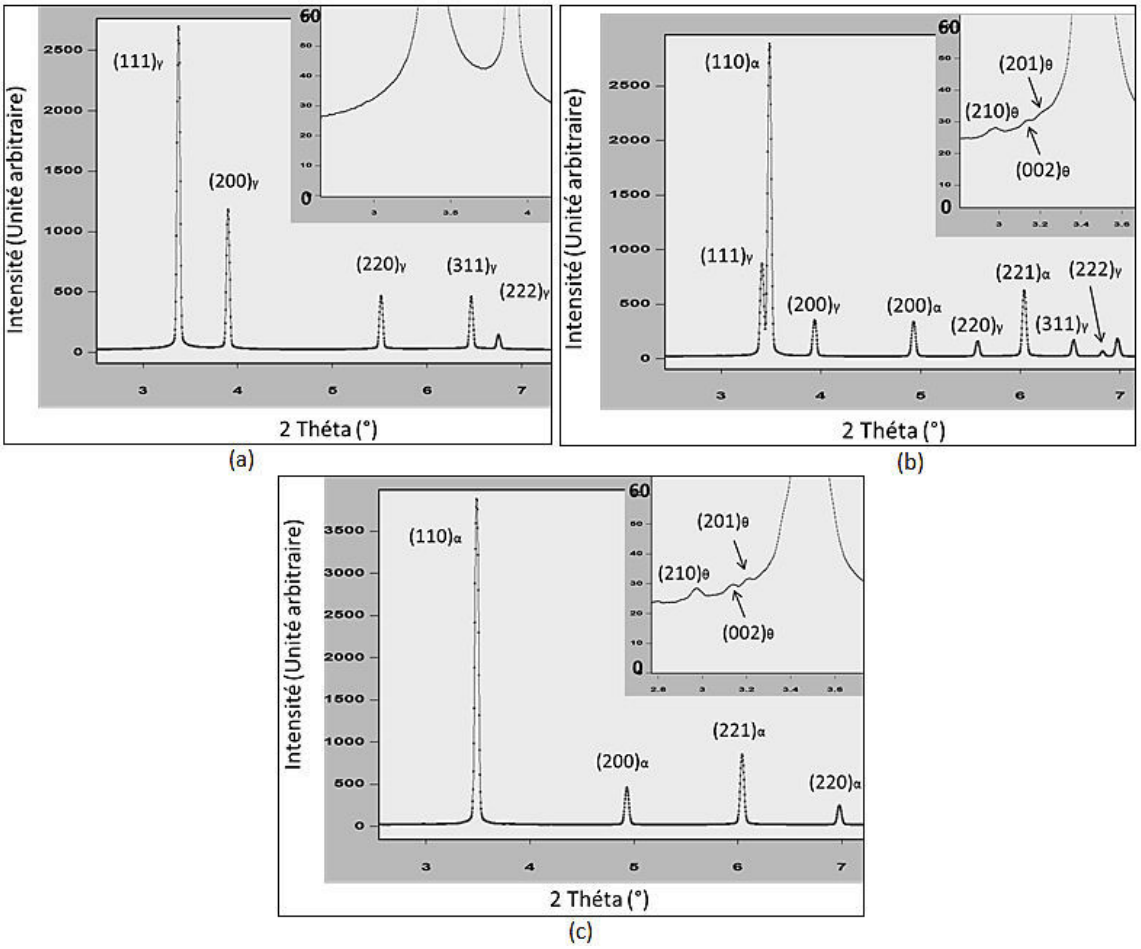


Fig.V.14 : Diffractogrammes 1D intensité/2θ représentatifs de trois états métallurgiques (a) après austénitisation totale (une phase cubique à faces centrées), (b) pendant la transformation bainitique (3 phases : tétragonale centrée - bainite, orthorhombique - cémentite, cubique à faces centrées - l'austénite résiduelle) et (c) pendant la granularisation (2 phases : tétragonale centrée - bainite, orthorhombique - cémentite). Pour observer les pics de diffraction dus à la cémentite, des agrandissements sont nécessaires.

L'austénite et la cémentite ont été quantifiées en considérant respectivement des structures FM-3M et PNMA. Pour ce qui est de la ferrite bainitique, des études récentes depuis 2013 [4] [5], principalement portées par des tenants de la théorie « diffusionless », ont montré que la ferrite bainitique peut présenter un excès de carbone en solution solide. Cette sursaturation est expliquée par la formation des sous-unités bainitiques dans une cristallographie tétragonale centrée et non cubique. Selon ces auteurs, la déformation de Bain entraine une réorganisation des atomes de carbone vers un seul site interstitiel octaédrique. Ainsi, comme la solubilité du carbone dans la ferrite augmente, celui-ci ne partitionne pas avec l'austénite. Les valeurs du rapport c/a retrouvées dans la littérature pour des aciers bainitiques sans carbure à 0.7/0.8%C transformés à 300°C et 350°C, varient de 1.0059 à 1.0084 [6,7].

Dans notre cas, les données de diffraction X ont été post-traitées en considérant cette possible tétragonalité. En effet, pour nos expériences, nous avons obtenu de meilleurs ajustements Rietveld avec une structure tétragonale centrée (I4/MMM) qu'avec une structure cubique centrée (IM-3M). Par conséquent, nous sommes à même d'étudier tout au long des traitements thermiques les paramètres de maille c et a de la structure bainitique. Ces paramètres nous permettent d'estimer ensuite la teneur en carbone dans la ferrite grâce à une formule empirique souvent utilisée pour les aciers martensitiques [8,9]

$$\%(at)C=0.0045\left(\frac{c}{a}-1\right) \quad (V.1)$$

L'application de cette relation est toutefois sujette à controverse car elle suppose l'absence totale de réorganisation du carbone entre les mailles.

Le fait de considérer la bainite de structure cristalline tétragonale n'a pas d'incidence sur tous les résultats précédemment obtenus en EBSD, MERENGUE2 ou DECRYPT, car ces techniques ne sont pas capables de détecter l'écart par rapport à 1 du rapport c/a, généralement inférieur à leurs résolutions spatiales.

II.2 Cinétiques de transformation bainitique

Pour la nuance N1, la microstructure BMIXTE a été obtenue par transformation isotherme en palier bainitique étagé à 410°C puis à 340°C, avant d'être sur-transformée à cette seconde température pendant 2 h. La figure V.15 montre le traitement thermique entre la fin d'austénitisation et la fin de transformation bainitique avec la cinétique de transformation bainitique associée. La superposition des deux courbes montre que la BHT formée à 410°C pendant 25 s représente 50% de la microstructure comme attendue. La totalité de l'austénite est transformée après 205 s à 340°C (c'est-à-dire après un temps total de transformation de 230 s). Ce temps est sensiblement plus court que celui que nous avions obtenu en dilatométrie (cf. tableau V.2) de 570 s.

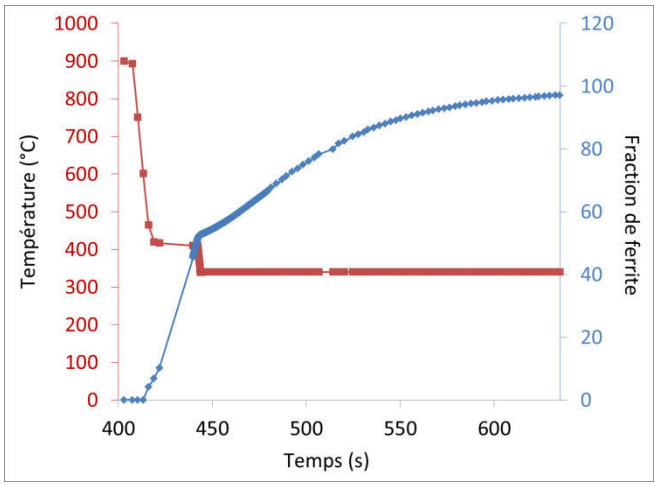


Fig.V.15: Evolution de la température lors du traitement *in situ* de la nuance N1 (en rouge) et de la fraction de bainite (en bleu) au cours du temps.

La microstructure BMIXTE de la nuance N2 a été obtenue en partie par refroidissement continu pour former la BHT et ensuite est complétée par la transformation isotherme de la BBT à 380°C, de façon analogue au traitement en bains de sels.

La figure V.16 montre la cinétique de transformation bainitique superposée au cycle thermique appliqué entre la fin d'austénitisation et la fin de transformation en fonction du temps. Nous constatons qu'avec la vitesse de refroidissement appliquée, la transformation bainitique commence à partir de la température 520°C. Cette dernière température est trop basse pour correspondre à une transformation ferritique pro-eutectoide comme nous l'avions supposé (cf. chapitre II § II.3.1). Au bout de 6 s, temps après lequel le palier bainitique isotherme commence, 60% de l'austénite est déjà transformée. La transformation complète est assurée par la formation de bainite en condition isotherme à 380°C en 50 s. Ce dernier temps de transformation finale est cohérent avec nos expériences en bains de sels.

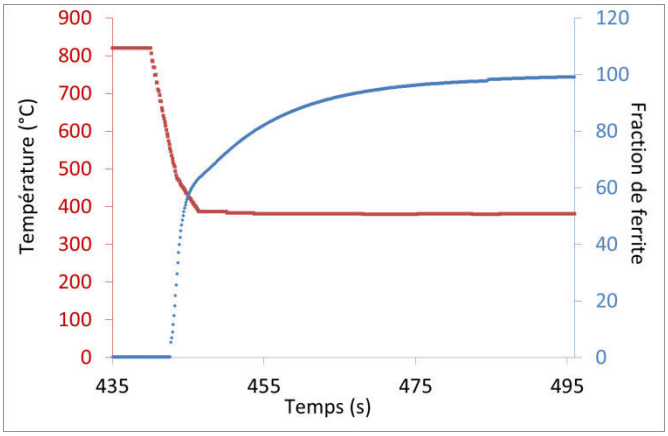


Fig.V.16 : Evolution de la température lors du traitement in situ de la nuance N2 (en rouge) et de la fraction de bainite (en bleu) au cours du temps.

En parallèle à la formation de la ferrite bainitique, les carbures commencent à précipiter et ceci dès l'apparition des premières lattes de bainite. Sur la figure V.17 nous montrons une représentation tridimensionnelle en fonction du temps et de 2θ, de 230 diffractogrammes associés à la transformation de la BMIXTE de la nuance N2. Le domaine 2θ représenté correspond à l'espace entre les pics (110) de la bainite et (200) de l'austénite entre lesquels 7 pics de cémentite sont possiblement observables (comme le montre l'encadré). On observe, à la fin du refroidissement, l'émergence d'un pic pouvant correspondre à de la cémentite

(transformation de la BHT). Ce spectre se renforce par la suite lors de la transformation bainitique à 380°C. En tout cas, la cémentite est présente dès le début de la transformation et précipite donc de manière continue lors de la transformation bainitique.

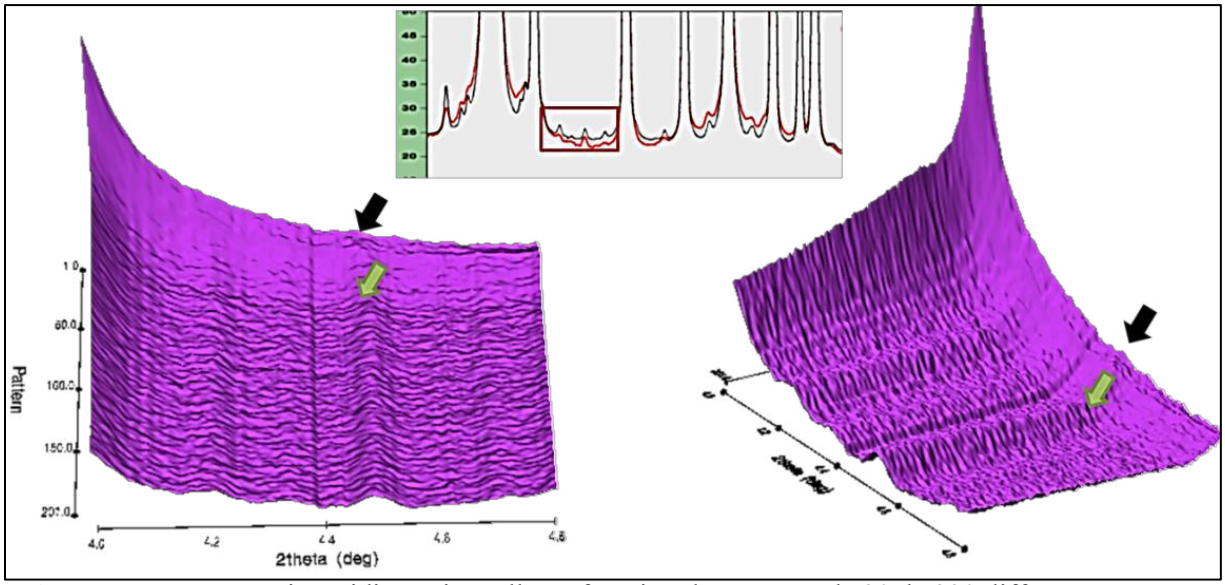
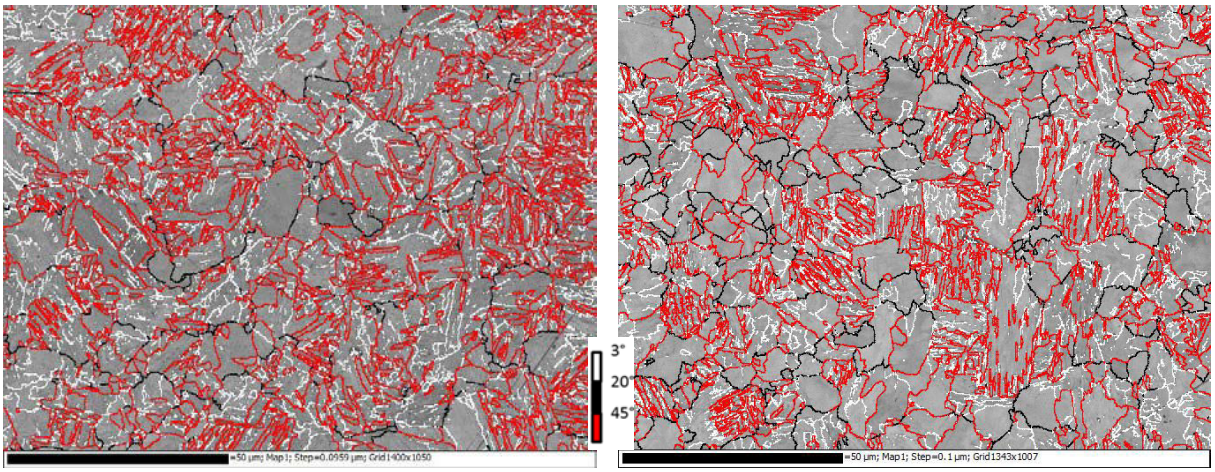
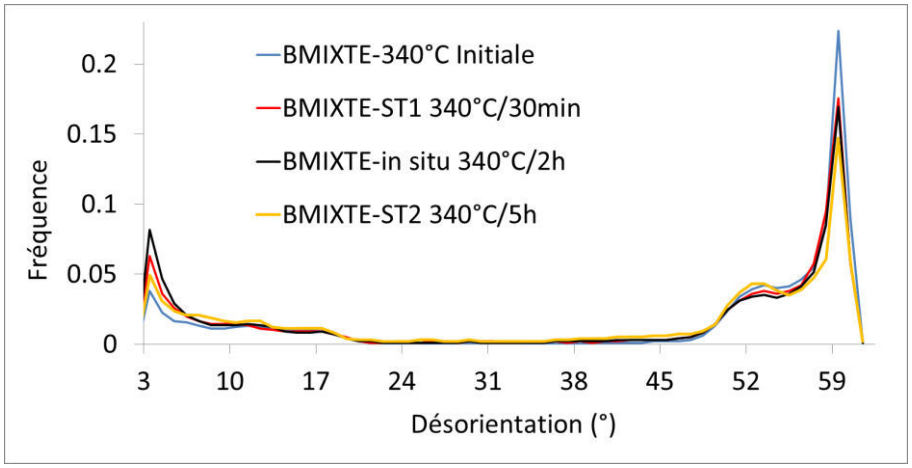


Fig.V.17 : Représentation tridimensionnelle en fonction du temps et de 2θ de 230 diffractogrammes associés à la transformation de la BMIXTE de la nuance N2 (diffractogrammes acquis toutes les 0.1s). L'encadré spécifie l'espace entre les pics (110) de la bainite et (200) de l'austénite dans lequel 7 pics de cémentite sont possiblement observables. Les flèches noires indiquent les pics associés à la cémentite en fin du refroidissement (formation de la BHT) et les flèches vertes en début de transformation bainitique à 380°C.

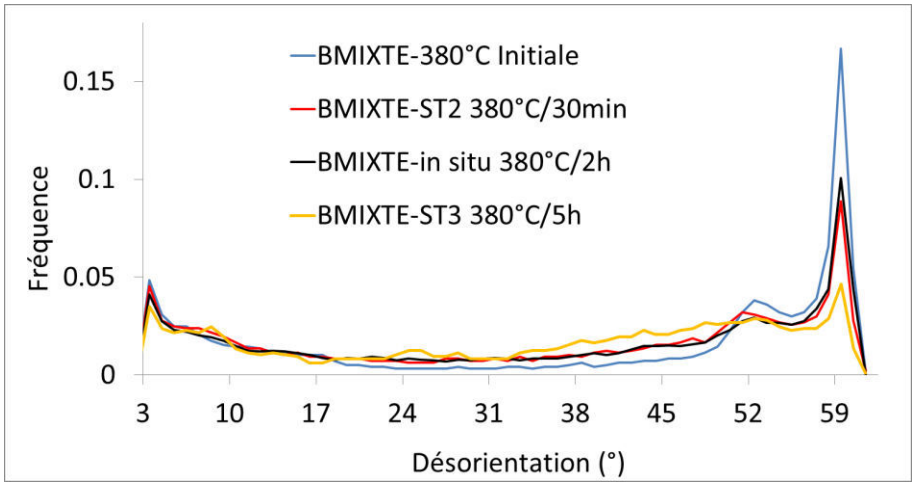
La figure V.18 montre des cartographies EBSD obtenues sur les microstructures à la fin du traitement dans les deux cas ainsi que les histogrammes des désorientations correspondants. Ces observations montrent que les processus de décomposition des microstructures ferritiques ont bien commencé au bout de 2 h dans les deux cas. On retrouve sur les cartographies des zones « décomposées » mais il reste de fortes fractions de zones en lattes fortement désorientées (joints de blocs à 60°). Les histogrammes de désorientations après 2h de sur-transformation s'inscrivent bien dans la tendance observée dans la première section.



(a) (b)



(c)



(d)

Fig.V.18 : Cartographies EBSD de désorientations pour les microstructures (a) BMIXTE après sur-transformation de 2h à 340°C pour la nuance N1 et (b) BMIXTE après sur-transformation de 2h à 380°C pour la nuance N2. (c,d) Histogrammes de désorientations angulaires tronqués à 3° des deux microstructures (a) et (b) respectivement. Ont été reportés aussi les histogrammes obtenus dans la première section à des fins de comparaison sur des échantillons BMIXTE et BMIXTE-ST.

II.3 Sursaturation en carbone

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à l'évolution de la tétragonalité de la maille bainitique en fonction du temps, pendant la transformation puis pendant la sur-transformation. La figure V.19 présente l'évolution du rapport de tétragonalité c/a en fonction du temps ainsi que la fraction de phase bainitique mesurée lors de ces essais. Il apparait très clairement que le rapport augmente lors des transformations bainitiques initiales puis diminue progressivement.

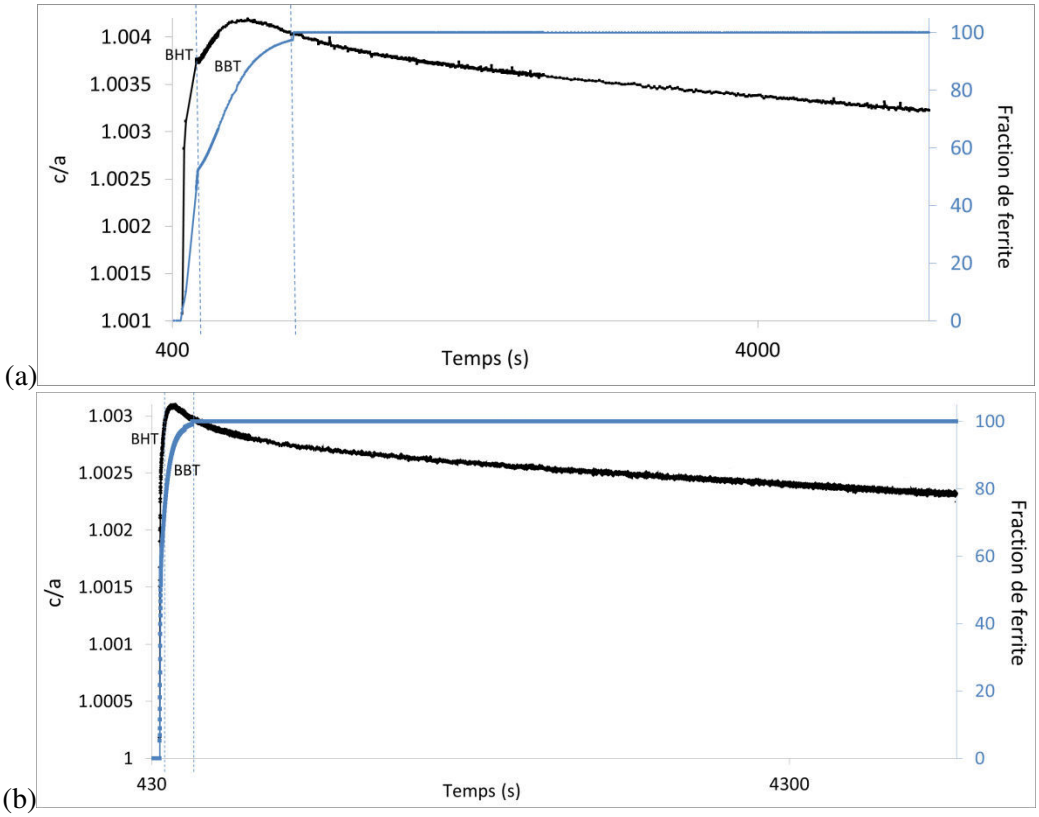


Fig.V.19 : Cinétique de transformation bainitiques BMIXTE (en bleu) et évolution du rapport c/a en fonction du temps (lors de la transformation BHT, BBT puis lors de la sur-transformation) (en rouge). Essais in situ sur les nuances (a) N1 et (b) N2.

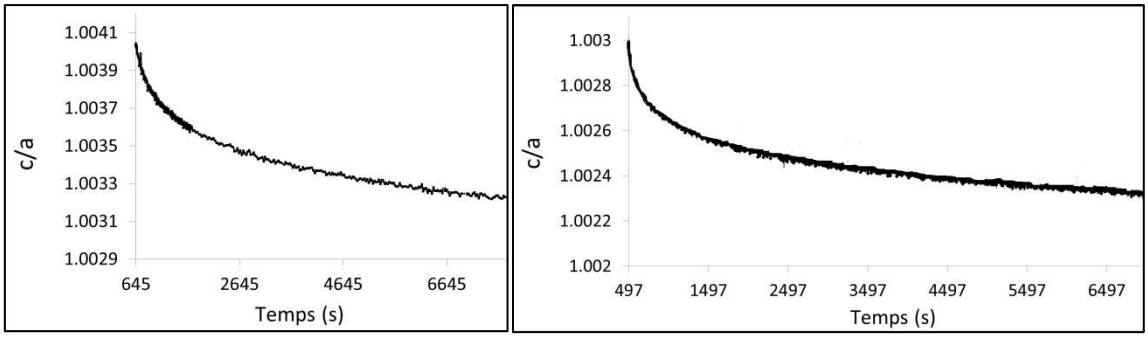
L'augmentation du ratio c/a commence dès l'apparition de la BHT et se poursuit lors de la transformation de la BBT. La valeur maximale atteinte pour la nuance N1 à 340°C est de 1.0042 (à 85% de la transformation), ce qui correspond à une teneur de 0.093%C d'après l'équation (V.1). A la fin de la transformation, le rapport a déjà diminué jusqu'à 1.004.

La nuance N2 présente les mêmes évolutions. A 5% de la transformation, la BHT présente un rapport c/a de 1.0005 qui augmente avec l'avancement de la transformation. Ce rapport atteint un maximum de 1.003 à 90% de la transformation, puis il diminue légèrement (1.0029) à la fin de la transformation. La teneur maximale atteinte est de 0.068%C.

Ces tendances s'interprètent bien dans une approche « diffusionless ». Comme les nouvelles sous-unités sont sursaturées en carbone, la teneur en moyenne de la bainite doit nécessairement être élevée et proche de la composition de l'austénite mère. Toutefois, cette sursaturation est compensée par la partition rapide du carbone vers l'austénite et la précipitation de la cémentite (qui apparait très tôt lors de la transformation comme nous l'avons vu ci-dessus). Au début de la transformation, la germination de bainite sursaturée est

dominante par rapport à la déségrégation de la bainite déjà formée (et donc moins riche en carbone). En moyenne, la teneur en carbone dans la bainite augmente donc progressivement. Le second mécanisme devient dominant quand la transformation bainitique ralentit et explique pourquoi l'enrichissement atteint une limite.

Lors de la sur-transformation, les rapports c/a continuent à diminuer progressivement probablement à cause des mécanismes précités (partition et précipitation des carbures, y compris maturation). Nous avons représenté leurs évolutions en fonction du temps sur les figures V.20. Dans les deux cas, nous observons qu'elles présentent des allures décroissantes saturantes. En effet, on s'attend que ce ratio tende vers c/a = 1 pour après partition complète, i.e. pour un réseau cubique centré. Selon nos projections avec une loi exponentielle, il faudrait environ 50 000 h et 10 000 h respectivement pour effacer complètement la tétragonalité dans la BMIXTE des nuances N1 et N2.

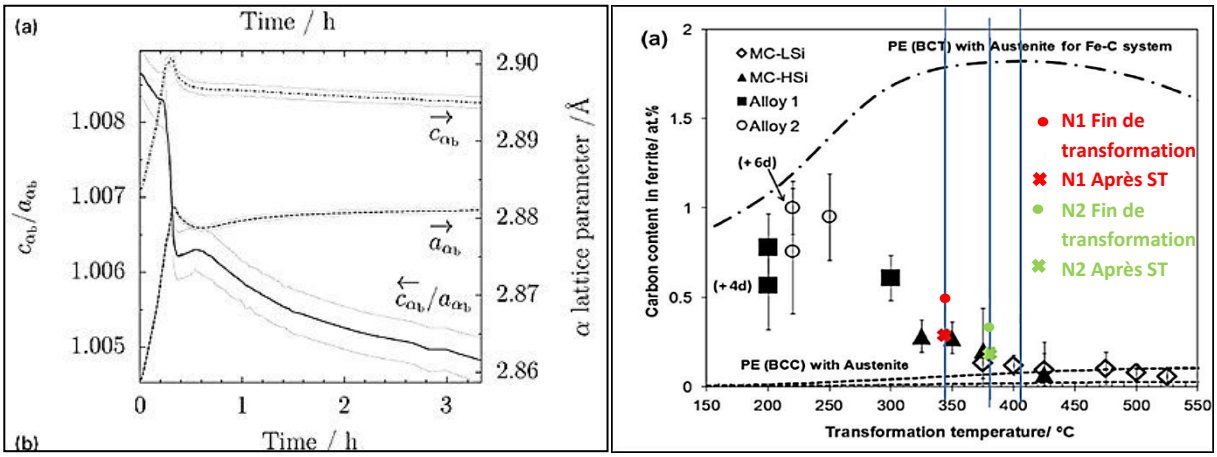


(a) (b)

Fig.V.20: Evolution du rapport c/a en fonction du temps lors de la sur-transformation des essais *in situ* sur les nuances (a) N1 et (b) N2.

L'évolution de la tétragonalité de la ferrite bainitique observée dans nos nuances N1 et N2 est similaire aux résultats de la littérature. La figure V.21.a extraite des travaux de Hulme-Smith et al. [5] montre l'évolution des paramètres de maille c et a ainsi que de leur rapport, pour une transformation bainitique isotherme à 300°C dans un acier Fe-%0.84%C-2.3%Mn-1.8%Si-1.5%Co-1.5%Cr-0.2%Mo-0.1%V. Le rapport c/a augmente d'abord et atteint un maximum avant la fin de transformation. Il diminue ensuite régulièrement, diminution que l'on observe sur la figure. Les auteurs soulignent comme nous qu'après un maintien isotherme long le rapport c/a continuerait à diminuer au fur et à mesure que le carbone diffuse, pour s'approcher de la valeur 1 correspondante à la maille cubique centrée.

Les taux de carbone dans la bainite estimés par notre analyse sont en cohérence avec d'autres valeurs mesurées sur d'autres alliages aux mêmes températures de transformation. La figure V.21.b tirée de [6] montre les positions de la concentration en carbone de la ferrite bainitique par rapport aux lignes de para-équilibre (PE) entre la ferrite cubique centrée et l'austénite et entre la ferrite tétragonale centrée et l'austénite. Ces résultats ont tous été obtenus pour différents aciers bainitiques à 0.3%C. Sur cette figure, nous avons superposé les deux teneurs de carbone estimées après transformation et fin de la sur-transformation sur nos deux nuances. Elles s'inscrivent parfaitement dans la tendance observée dans la littérature, que les auteurs expliquent avec des arguments associés à la théorie « diffusionless ».



(a) (b)

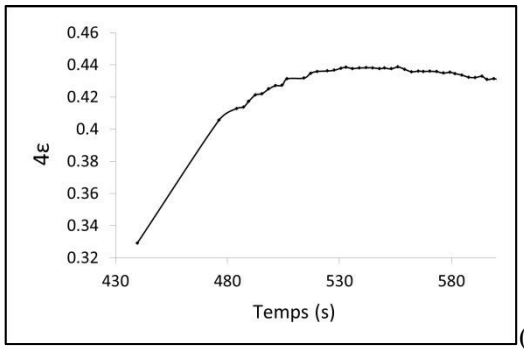
Fig.V.21 : (a) Evolution des paramètres de maille c et a ainsi que de leur rapport lors de la sur-transformation d'un acier bainitique en condition isotherme à 300°C dans un acier Fe-%0.84%C-2.3%Mn-1.8%Si-1.5%Co-1.5%Cr-0.2%Mo-0.1%V d'après [5] (b) Concentration en carbone de la ferrite bainitique mesurée dans des aciers bainitiques en fonction de la température de transformation d'après [6]. Les valeurs que nous avons obtenues sur nos alliages en fin de transformation (rond) et après sur-transformation (croix) pour les nuances N1 (rouge) et N2 (vert).

II.4 Evolution du paramètre de déformation et de la densité de dislocations

II.4.1. Etude *in situ* sur les nuances N1 et N2

Comme nous l'avons expliqué au chapitre II § VI.1, la méthode Williamson-Hall permet de relier les largeurs à mi-hauteur (FWHM) des pics de diffraction de la ferrite à un paramètre représentatif de l'état de déformation ε de la phase et à une taille de cristallite L (taille des domaines diffractants). En étudiant les diffractogrammes successifs obtenus lors d'une expérience *in situ*, cette méthode permet d'apprécier qualitativement l'évolution de la densité des dislocations de la bainite lors de la transformation et de la sur-transformation.

Les paramètres de déformation ε mesurés lors des essais sur les deux nuances N1 et N2 sont représentés en fonction du temps respectivement sur les figures V.22.a et V.22.b. Ils suivent une évolution comparable à celle de la tetragonalité ; ils augmentent au fur et à mesure que la transformation de la BHT avance, jusqu'à atteindre un maximum à environ 85% de la formation de la totalité de la bainite. Ensuite, ils commencent à décroitre. Comme discuté au chapitre I, on peut expliquer cette évolution à cause de la nature displacive de la transformation bainitique. Initialement, la déformation de transformation est principalement accommodée dans l'austénite résiduelle. Mais lorsque les fractions transformées augmentent, la bainite déjà formée et en cours de formation doit accommoder une partie croissante de la déformation. En conséquence, la bainite contient de plus en plus de défauts au cours de la transformation pour atteindre des niveaux élevés comme nous avons pu le voir en introduction. Ces mécanismes d'accommodation plastiques sont compensés par des mécanismes de restauration (y compris dynamique) qui agissent à hautes températures et qui vont avoir pour effet de diminuer la densité de dislocations. La compétition entre ces deux mécanismes explique la présence d'un maximum juste à la fin de la transformation.

(a) 

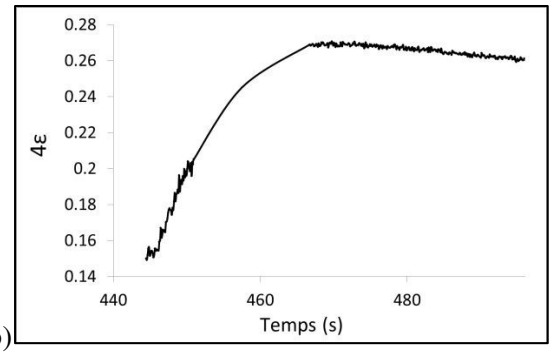
(b) 

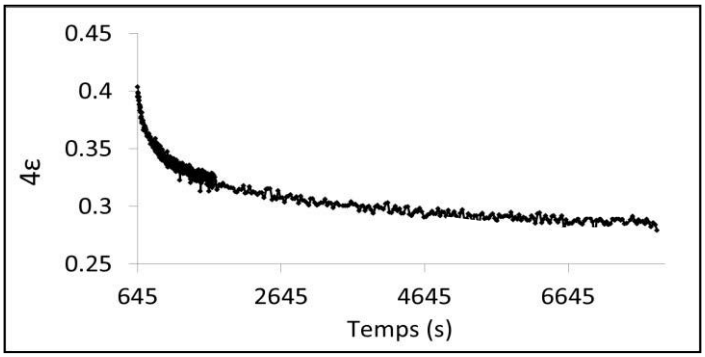
Fig.V.22 : Evolution des paramètres de déformation de Williamson-Hall mesurés lors des essais *in situ* sur les nuances (a) N1 et (b) N2 en fonction du temps. Le domaine représenté correspond à celui de la transformation initiale. Dans les deux cas, un maximum est atteint après environ 85% de transformation bainitique.

La figure V.23 montre les évolutions des paramètres de déformation ε mesurés lors des sur-transformations sur les nuances (a) N1 et (b) N2 en fonction du temps. Ces courbes décrivent une évolution décroissante saturante et qui n'est pas terminée après 2 h, comme dans le cas de la tétragonalité. A l'aide d'une extrapolation exponentielle, nous avons estimé un temps nécessaire pour une restauration complète de 39 h pour la nuance N1 et de 20 h pour la nuance N2. Ce résultat est finalement cohérent avec nos observations de la granularisation par EBSD. Par exemple, la microstructure BMIXTE-ST3 de la nuance N2 discutée dans la première section de ce chapitre, et qui était à 90% « granulaire » au bout de 5h de sur-transformation à 340°C, ne correspond pas à l'état final de restauration complète.

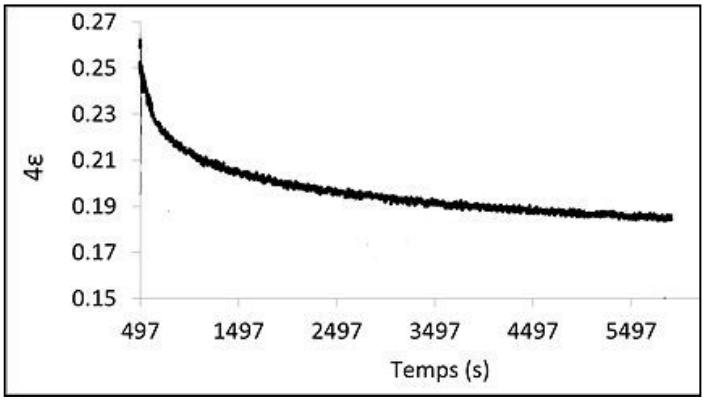
La corrélation entre mesure de la tétragonalité et paramètres de déformation pourrait suggérer qu'il existe un biais dans l'analyse car ils sont tous les deux liés à la FWHM. C'est pour cette raison que nous avons conduit des analyses *post mortem* avec une méthode de dépouillement différente que nous expliquerons par la suite.

Il apparait aussi sur ces deux figures que la diminution de la densité de dislocations présente une allure exponentielle saturante, avec un régime rapide suivi d'un régime lent. De façon surprenante les cinétiques de restauration semblent assez similaires d'une expérience à l'autre (la transition entre régime rapide et lent) intervient vers 530 s environ, donc pour des microstructures très différentes en termes de taux de granularisation et d'avancement de la décomposition (cf. Fig V.18).

Le régime lent de restauration pourrait être cohérent avec l'étape 2 de la décomposition des structures de type A (diminution de la densité de joints de sous-blocs et de joints faiblement désorientés) (cf. Fig V.13). Toutefois, cela n'exclut pas que de la restauration puisse aussi avoir lieu dans les structures de type B encore présentes. Par contre, on ne peut clairement pas attribuer la forte diminution de la densité de dislocations à l'étape 1 (le processus est à peine débuté pour l'expérience sur la nuance N1 par exemple). Ce constat est très important car il exclut que l'étape 1 nécessite de fortes densités de dislocations pour s'initier (comme la recristallisation directe par exemple). Pour confirmer cette observation, nous avons donc réalisé des mesures *post mortem* sur les échantillons BMIXTE-ST de la nuance N2 obtenus en bains de sels.



(a)



(b)

Fig.V.23 : Evolution des paramètres de déformation de Williamson-Hall mesurés lors des essais *in situ* sur les nuances (a) N1 et (b) N2 en fonction du temps. Le domaine représenté correspond à celui des sur-transformations de 2h.

II.4.2. Etude *post mortem* sur la nuance N2

Nous avons mesurés les densités de dislocations dans les échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST1, BMIXTE-ST2 et BMIXTE-ST3 de la nuance N2 (cf. Tab.V.1) post mortem. Le dispositif expérimental utilisé à l'ESRF est détaillé au chapitre II § VI et est très similaire à celui utilisé pour les expériences *in situ*. La seule différence est que les échantillons ne sont pas chauffés.

Pour cette expérience, nous avons eu l'opportunité de collaborer avec Gabor Ribarik pour analyser nos spectres de diffraction 1D et mesurer réellement des densités de dislocations, ce que ne permet pas de faire la méthode de Williamson-Hall *stricto sensu*. En effet, cette dernière méthode donne accès à un paramètre de déformation qui doit s'interpréter qualitativement. Les densités de dislocations ont été quantifiées au moyen d'une analyse de type Monte Carlo développée dans l'équipe du professeur Ungar [10]. Ce calcul consiste à résoudre l'équation décrivant les paramètres microstructuraux obtenus par un ajustement de type CMWP (Convolutional Multiple Whole Profile fitting):

$$C_{CMWP}(g) \cong \sum_{b,l} \kappa^2_{b,l}\, C_{theor}(g,b,l,C_{i,j}) - \frac{a}{g^2}$$

Où g est la norme du vecteur de diffraction $|g| = 2\sin\theta_B/\lambda$ (avec θ_B l'angle de Bragg exact), b et l les vecteurs de Burgers et de la ligne de dislocation, $C_{CMWP}(g)$ et $C_{theor}(g, b, l, C_{i,j})$ sont les facteurs de contrast de dislocation calculé par la méthode CMWP et théorique, et $C_{i,j}$ les constantes élastiques du matériau. a est une constante. $\kappa^2_{b,l}$ est le rapport des densités de

dislocations théoriques et calculées $\frac{\rho}{\rho_{CMWP}}$, multiplié par le rapport des carrés des vecteurs de Burgers $\frac{b^2}{b_{CMWP}^2}$.

Cette méthode permet aussi d'éviter les possibles biais de l'analyse Rietveld (corrélation entre tétragonalité et FWHM) discutés ci-dessus.

La figure V.24.a montre l'évolution des densités de dislocations déterminées par cette méthode en fonction du temps de traitement au palier isotherme de 380°C. Nous observons d'abord une chute importante de la densité de dislocations entre la fin de transformation (50 s) et la sur-transformation de 10 min. Ensuite la diminution de cette densité continue mais d'une manière plus lente. Nous remarquons ici encore une évolution en deux régimes globalement avec une transition avant 600 s de sur-transformation, beaucoup plus marquée qu'avec le seul paramètre de Williamson-Hall.

Entre la microstructure initiale et finale, la valeur de la densité de dislocation moyenne passe de 1.2 10^{13} m^{-2} à 2 10^{12} m^{-2}. La valeur obtenue pour la microstructure initiale est très cohérente avec nos recherches bibliographiques (cf. chapitre I § II.3).

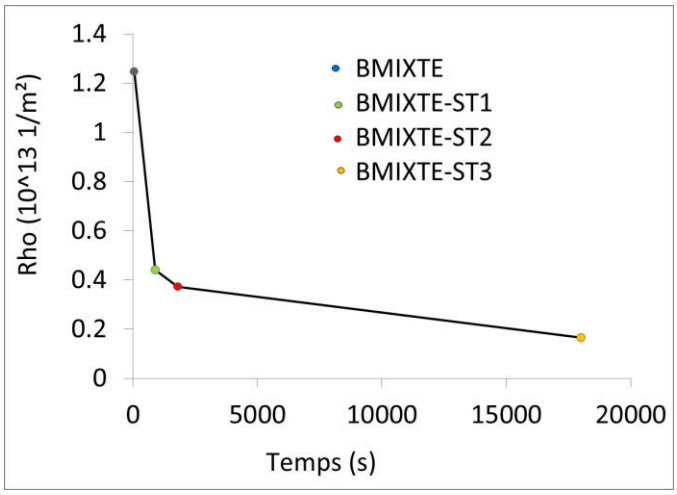


Fig.V.24 : Densités de dislocations déterminés à partir des diffractogrammes 1D post mortem obtenue sur les échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST1, BMIXTE-ST2 et BMIXTE-ST3 de la nuance N2.

Le principal intérêt de ces expériences *post mortem*, outre le fait qu'elles viennent confirmer nos observations *in situ* et fournissent des ordres de grandeurs importants, est que nous pouvons les corréler aux observations en EBSD (cf. Fig.V.3 et V.4 de ce chapitre).

Pendant les 30 premières minutes de sur-transformation, on observe principalement une disparition des joints de blocs et une augmentation de la fraction granularisée (de 10% à 61%). La densité de sous-blocs et de joints de faibles désorientations n'évolue pas comme le montre les figures V.5 et V.6. Ainsi, on peut observer un régime rapide de restauration si la bainite est déjà décomposée (ces dernières mesures post mortem) ou très peu décomposée (expérience in situ sur la nuance N1). On retrouve donc le fait que restauration et décomposition ne sont pas directement corrélées. La diminution de la densité de dislocations commence rapidement juste avant la fin de la transformation indépendamment de l'évolution morphologique des microstructures. Ce constat est important car il montre que la densité de dislocations dans la microstructure bainitique n'est certainement pas le facteur déclenchant l'étape 1 de la décomposition. Ce résultat est cohérent avec les calculs d'ordre de grandeur conduits au chapitre I.

II.5 Conclusion intermédiaire

Dans cette deuxième partie, nous avons discuté des expériences *in situ* en DRXHE sur ligne de lumière synchrotron permettant d'investiguer sous un autre angle les sur-transformations de structures bainitiques mixtes. Les résultats obtenus ont été aussi confirmés par des expériences post mortem sur la nuance N2.

Nous avons confirmé la nature des microstructures initiales BMIXTE et leurs cinétiques de transformation mesurées en dilatométrie. Nous avons pu observer que les carbures apparaissaient dès le début de transformation bainitique dans nos aciers (dans notre cas, dès le début de la transformation à haute température) et qu'il s'agissait bien de cémentite. Lors de ces transformations bainitiques, la teneur moyenne en carbone en solution solide dans la ferrite augmente sensiblement (de l'ordre de 0.1%C dans la nuance N1) ainsi que la densité de dislocations à cause de la nature displacive de la transformation. Les estimations que nous obtenons en DRX dans la nuance N2 sont de l'ordre de 10^{13} m^{-2}, valeur très cohérente avec celles de la littérature.

Lors des sur-transformations à basse température (maintien isotherme à T_{BBT}), on observe une diminution de la sursaturation en carbone dans la ferrite (probablement à cause de la précipitation) mais aussi une forte restauration (diminution de la densité de dislocations). Sur les trois expériences considérées (qui présentent des cinétiques de granularisation différentes), les cinétiques de restauration sont étonamment comparables, ce qui laisse penser que restauration et granularisation ne sont probablement pas corrélées de façon directe. L'étape 2 de la décomposition contribue très certainement au processus de restauration mais il n'est pas exclu d'avoir des processus de restauration au sein des lattes fortement désorientées (dans les zones de type A). Par contre, cette observation exclut que l'étape 1 nécessite de fortes densités de dislocations pour avoir lieu, comme nos calculs du chapitre I le laissent penser.

L'objet de la dernière section sera donc de proposer deux mécanismes alternatifs pour expliquer comment les joints de fortes désorientations peuvent disparaitre, en fonction des forces motrices disponibles (principalement des énergies de joints). Ces mécanismes sont directement inspirés d'observations microstructurales en EBSD et en BSE conduites aux tout premiers stades de la granularisation.

III. Mécanismes de disparition des joints de fortes désorientations

Dans cette partie, nous allons proposer des mécanismes réactionnels permettant d'expliquer la phase 1 de la figure V.13, i.e. la disparition des joints de fortes désorientations à basse température dans les structures de type B. En effet, cette observation est l'un des résultats les plus surprenants de cette thèse. A notre connaissance, nous sommes les premiers à chercher à expliquer ce phénomène dans les structures bainitiques et c'est un travail qu'il faudra bien entendu poursuivre au-delà de cette thèse. Une autre conclusion importante de notre travail est que la présence de bainite supérieure (de type A) semble nécessaire pour initier le processus.

Les deux explications que nous allons proposer

- se basent sur des observations microstructurales réalisées sur un échantillon aux tout premiers stades de la décomposition, à savoir le BMIXTE-ST1 de la nuance N2 (sur-transformée à 380°C pendant 10 min seulement).
- sont soutenues par des approches énergétiques impliquant uniquement des joints plus ou moins désorientés. L'énergie stockée en volume au niveau de ces joints peut en effet être élevée dans nos aciers. Même si on considère des joints à 60° de faible énergie (typiquement 0.4 $J.m^{-2}$) et une structure essentiellement planaire (blocs

d'épaisseur 300 nm), l'énergie volumique correspondante est d'environ 10 $J.mol^{-1}$, donc environ 10 fois l'énergie associée aux dislocations isolées.

- sont basées sur des processus diffusifs de reconstruction analogues à ceux observés en recristallisation. Elles requièrent une mobilité minimum des joints (cf. chapitre I § IV.2.2). Les mécanismes sous-jacents sont donc thermiquement activés dans les deux cas.

III.1. Mécanisme de type SIBM

Le premier mécanisme que nous pensons actif est directement inspiré des travaux de Bayley et Hirsch [11] que nous avons déjà détaillé au chapitre I § IV.2.2. Dans cette approche, les auteurs montrent qu'un sous-grain peut croitre dans une structure elle-même formée de sous-grains si sa taille est suffisante. Les auteurs montrent que la taille minimum L de la structure qui doit croitre est donné par :

$$L=2r\,\frac{\delta_g}{\delta_s} \quad (V.2)$$

avec δ_g et δ_s les énergies respectives des joints du sous-grain en expansion et des joints dans la structure consommée. Dans notre cas, on va supposer qu'un paquet de bainite inférieure est en contact avec un paquet de bainite supérieure. Cette situation est représentée très schématiquement sur la figure V.25 avec les mêmes conventions que la figure V.13. Les 2 variants désorientés de 60° de la bainite inférieure (ou de la martensite de type B) sont en bleu et vert et la bainite supérieure est en orange. Le joint entre les deux bainites est aléatoire dans le cas général et donc présente une énergie typique de 1.2 $J.m^{-2}$. Dans la bainite inférieure (ou la martensite, de type B), les joints à 60° présentent une énergie plus basse, typiquement de (0.4 $J.m^{-2}$). Comme les blocs de la bainite inférieure ont une épaisseur de typiquement 300 nm, le paquet de bainite supérieure pourra eventuellement croitre et consommer la bainite inférieure si sa taille est de 1.8 µm (finalement 6 x la taille de blocs) d'après l'équation V.2. Autrement dit, pour que la bainite inférieure puisse disparaitre selon ce processus, il faut nécessairement qu'elle soit en contact avec une bainite grossière compte tenu des énergies d'interface respectives.

Nous avons effectivement observés des configurations ressemblant beaucoup à cette situation où un grain grossier semble croitre au dépend de structures lamellaires. La figure V.26 montre des micrographies MEB en condition ECCI obtenues sur l'échantillon BMIXTE-ST1 de la nuance N2. Sur la figure a, à faible grossissement plusieurs zones où ce mécanisme semble se produire sont encadrées. La figure b correspond à un agrandissement de la zone encadrée en blanc. Quelques dislocations isolées sont visibles en contraste clair dans le grain grossier. Comme attendu par le modèle de Faivre et Doherty, l'interface mobile ne doit pas rester plane et doit s'enfoncer au niveau des joints de blocs. Cette observation tend à conforter ce modèle même si les angles que l'on observe sont trop aigus par rapport aux attentes (avec les énergies considérées on attend un angle φ de 80° environ).

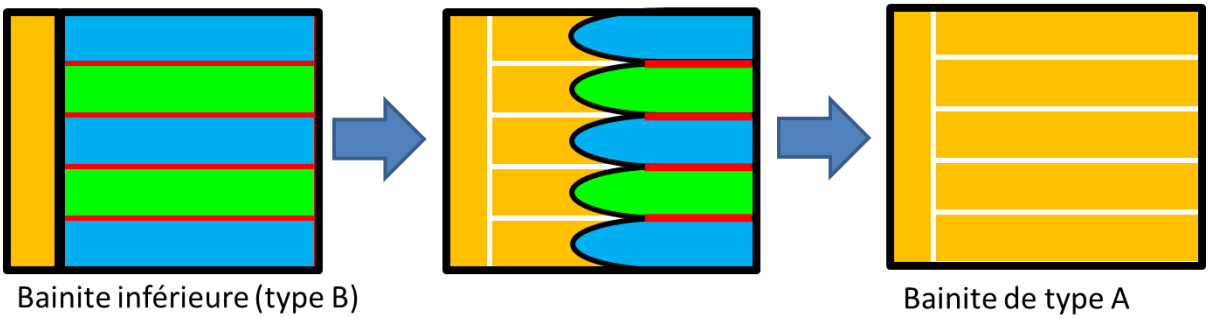
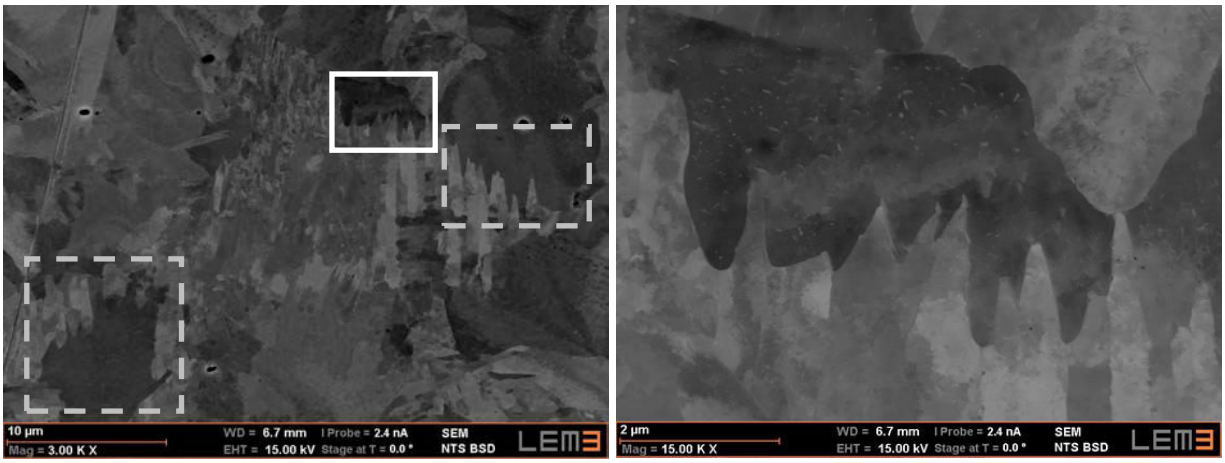


Figure V.25: Mécanismes de type SIBM inspiré de BAILEY et HIRSCH pour expliquer l'étape de conversion de la bainite inférieure (type B) en microstructure de type A, analogue à de la bainite supérieure. Le joint aléatoire de paquet orange (de type A) migre et consomme le paquet de type B, laissant des joints de faibles désorientations (en blanc).



(a) (b)

Fig V.26 : Micrographies MEB en configuration ECCI de l'échantillon BMIXTE-ST1 (sur-transformé 10 min à 380°C). (a) Mise en évidence de zones granulaire semblant consommer des zones lamellaires selon un processus de type SIBM (zones encadrées en particulier) (b) agrandissement de la zone encadrée en blanc. Quelques dislocations isolées sont visibles en contraste claire dans le grain grossier.

Cette proposition appelle toutefois un certain nombre de remarques. La première est que l'approche de Faivre et Doherty suppose que le grain croissant au dépend de la structure de sous-joints soit exempt de défauts. C'est ce que nous observons sur la figure b. Toutefois, nos observations systématiques par EBSD de la première partie de ce chapitre laissent penser que la bainite inférieure se transforme plutôt en structure intermédiaire de type A, donc contenant des sous-blocs rectilignes. Ce mécanisme n'est donc certainement pas le plus actif. D'ailleurs, ces configurations sont rares statistiquement. Le second défaut de ce modèle est qu'il explique la formation de domaines granulaires dont la taille est supérieure à celle du paquet originel, ce que nous n'observons pas en moyenne.

III.2. Mécanisme de type « régression »

La seconde explication se base sur la fait lorsque l'on réalise des transformations bainitiques mixtes, en commençant par la bainite supérieure, que celle-ci germe dans la majorité des grains austénitiques (en tout cas, dans toutes nos structures mixtes compte tenu des fractions de bainite supérieure considérées supérieures à 35%) et décore un grand nombre de joints de PAGs. Lorsque la transformation bainitique inférieure commence, il est alors très probable que certains blocs présentent les mêmes variants que la bainite supérieure déjà présente. Autrement dit, on pourrait avoir un processus de sélection de variant dans la bainite inférieure

à partie d'un « germe » de bainite supérieure. Comme ce processus peut être très local et sur de fines épaisseurs, cette configuration ne s'observe pas systématiquement en 2D par EBSD, la technique que nous avons utilisée.

Sous cette hypothèse, les travaux de Winning et al. [12] nous montre que l'interface des nouveaux variants par rapport au variant de la bainite supérieure va subir une très forte pression pour régresser (cf. chapitre I § IV.2). La pression motrice P sera égale :

$$P = \frac{\delta_s}{r} \quad (V.3)$$

avec δ_s l'énergie des joints de blocs (typiquement 0.4 $J.m^{-2}$) et r l'épaisseur des blocs (r = 300 nm). r correspond en fait au rayon de courbure de l'extrémité du bloc. Dans notre cas, la pression est de 1.3 MPa, valeur bien supérieure à celle observée par Winning et al. sur des microstructures modèles. Dans cette configuration, l'extrémité des blocs concernés va régresser au profit du variant originel (pression de gauche vers la droite sur le variant minoritaire). Cette situation est présentée sur la figure V.27 avec les mêmes conventions que les figures précédentes. Dans ce cas, un variant croit naturellement dans la direction longue des blocs, sans modifier nécessairement leurs épaisseurs, jusqu'à disparition complète des autres variants. La force motrice de ce processus (disparition des joints) est démultipliée par des effets de courbure locale des variants.

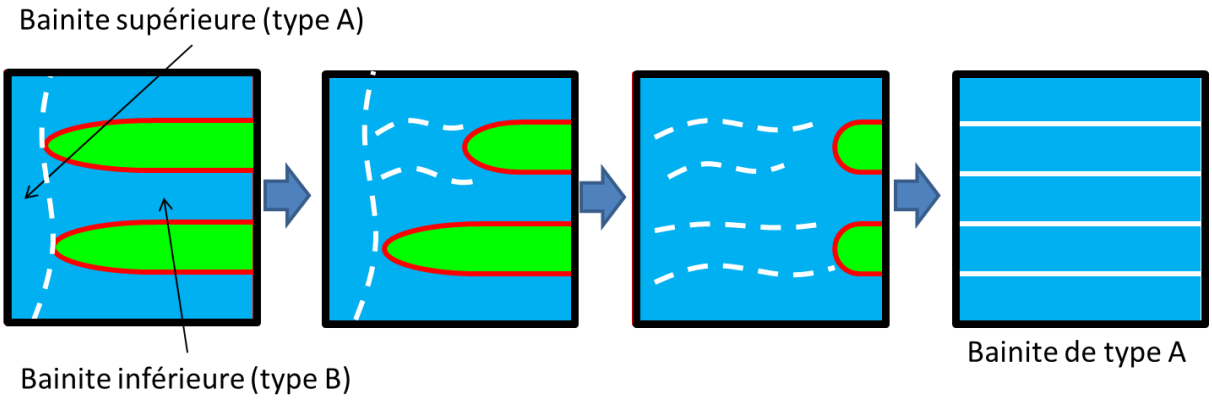
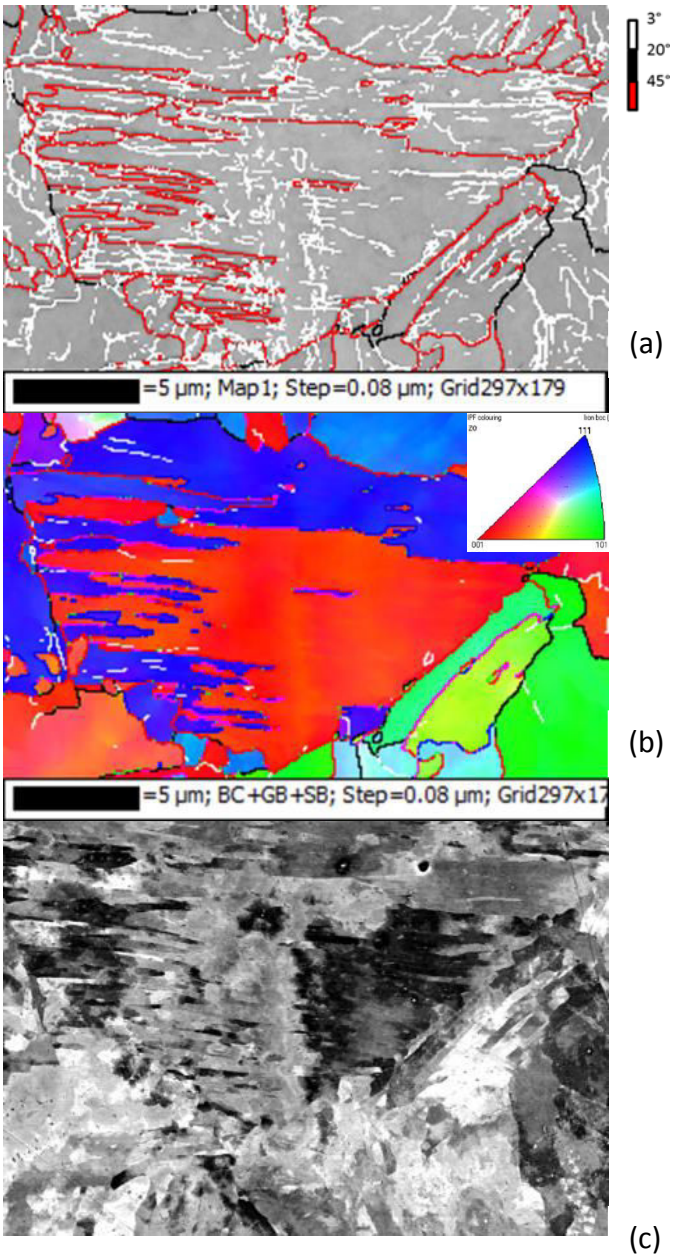


Figure V.27 : Mécanismes de type « régression » inspiré de Winning et al. pour expliquer l'étape de conversion de la bainite inférieure (type B) en microstructure de type A, analogue à de la bainite supérieure. Les blocs de variants verts régressent.

Contrairement au processus de type SIBM, nous avons souvent observé des configurations comparables à celles de la figure V.27. Les figures V.28, 29 et 30 montrent des études réalisées en EBSD en résolution angulaire améliorée et en MEB-BSE sur 3 zones différentes de l'échantillon BMIXTE-ST1. Les paquets observés présentent un variant principal (région de type A) qui semble croitre au dépend d'une région de type B (étape 1 du processus de décomposition). Ces configurations mixtes continues rendent d'ailleurs difficiles la détermination automatisée des proportions de bainites de type A et B sur ces microstructures.

Sur la figure V.28, le variant majoritaire (en rouge sur l'IPF) contient une forte densité de joints de faibles désorientations (en blanc sur la cartographie de désorientation) mais conserve une structure en lattes (micrographie MEB-BSE). Ce résultat tendrait à confirmer l'existence d'un intermédiaire réactionnel entre l'étape 1 et de l'étape 2 de la décomposition. Sur la figure V.29, dans la partie basse du paquet, on ne distingue plus la structure en lattes. Il est donc possible que nous observions une structure où les étapes 1 et 2 de la décomposition ont eu lieu dans le même grain. On retrouve cette configuration sur la figure V.30 dans une situation

encore plus avancées. Dans le paquet du bas, les blocs fortement désorientés ont quasiment disparu et la zone de structure en lattes (type A) est réduite dans un grain déjà granulaire. Dans le paquet du haut, l'étape 1 est terminée et seuls des processus de restauration sont à l'œuvre pour éliminer les sous-joints faiblement désorientés.



(a)

(b)

(c)

Fig V.28 : (a) cartographie EBSD des désorientations, (b) IPF et (c) micrographie en MEB-BSE d'un même paquet bainitique en cours de décomposition (étape 1). Le variant originel (en rouge) consomme le variant de la bainite inférieure (en bleu) probablement par « régression ».

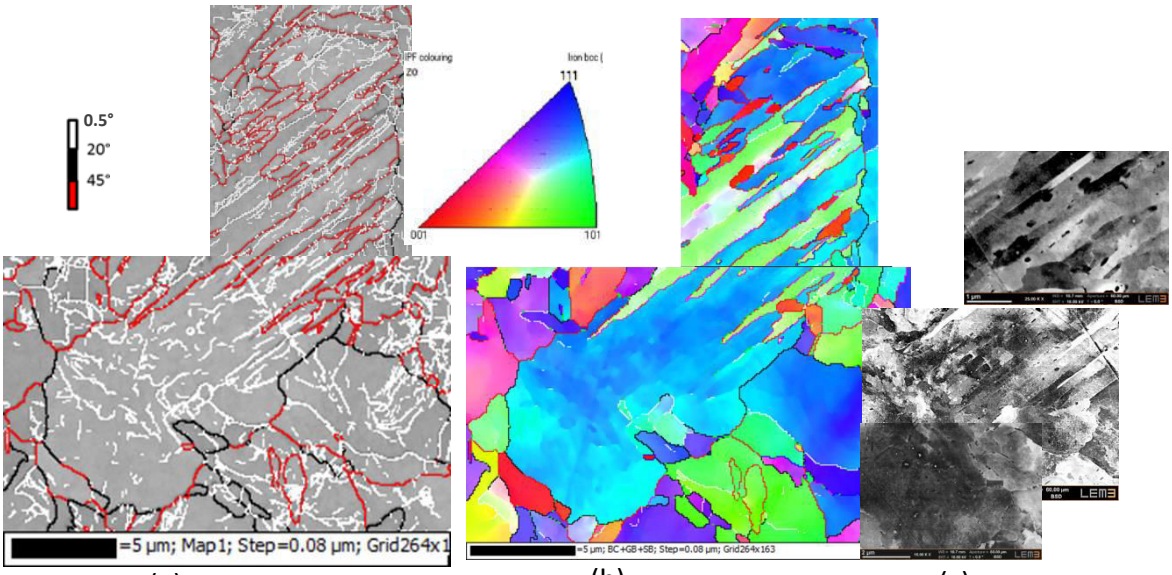


Fig V.29 : (a) cartographie EBSD des désorientations, (b) IPF et (c) micrographie en MEB-BSE d'un même paquet bainitique en cours de décomposition (étape 1). Le variant originel (en bleu) consomme le variant de la bainite inférieure (en vert) probablement par « régression ».

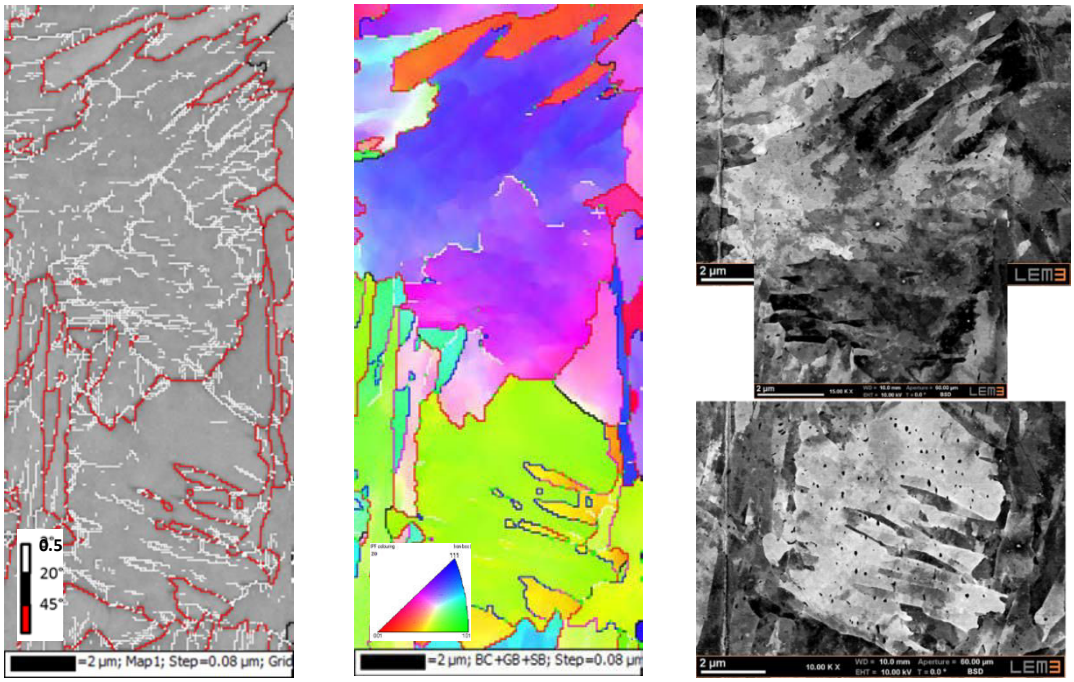


Fig V.30 : (a) cartographie EBSD des désorientations, (b) IPF et (c) micrographie en MEB-BSE de deux paquets bainitiques en cours de décomposition (étapes 1 et 2). Dans le grain vert en bas à droite, l'étape 1 est presque terminée par disparition du variant orange. Dans le grain violet/rose en haut, l'étape 2 est en cours (disparition des sous-blocs rectilignes)

Ce processus que nous avons qualifié de régression appelle les mêmes remarques que le processus SIBM. L'approche de Winning et al. considère uniquement des reconstructions parfaites sans défauts résiduels en amont des anciens blocs. Les carbures vont aussi très certainement jouer un rôle et modifier la mobilité des joints. C'est peut-être pour cette raison

que les phénomènes semblent plus rapides dans la nuance N2 que la nuance N1, au-delà de l'effet température.

Il faudrait aussi idéalement vérifier la RO locale au niveau de l'extrémité mobile des blocs. En effet, la pression exercée par le variant majoritaire dépendant de l'énergie de surface et donc peut varier significativement en fonction de la relation d'orientation exacte. Un joint aléatoire de fortes désorientations pourrait disparaitre encore plus rapidement qu'un joint à 60°. Cette remarque est importante car elle suggère que ce même mécanisme de régression pourrait s'appliquer aux sous-blocs et expliquer pourquoi ils disparaissent si rapidement pendant l'étape 2.

En conclusion, nos deux approches peuvent expliquer une partie des observations en EBSD, mais sont largement encore perfectibles. Il s'agit en l'état de propositions qu'il faudrait approfondir. Des observations *in situ* en MET que nous avons tentées auraient peut-être permis par exemple de mieux comprendre la dynamique et la mobilité de nos joints que nous ne pouvons observer que *post mortem*. De même, si le processus de « régression » se déroule comme nous le pensons, il devrait conduire à ce que l'extrémité des ilots résiduels présentent des joints de faible énergie minimisant la pression exercée par le variant principal. C'est donc une question qu'il serait intéressant de traiter dans le futur. Une autre question qu'il serait intéressant de poser concerne la quantité minimale de bainite supérieure nécessaire pour initier le processus.

IV. Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons investigué les mécanismes de granularisation dans des microstructures mixtes modèles. Nos principales conclusions sont les suivantes :

- le processus de décomposition des structures de type B (bainite inférieure ou martensite) passe en deux étapes. La première consiste en une disparition des joints de fortes désorientations laissant des sous-joints rectilignes. La structure ainsi convertie est semblable à une structure de type A. Ce processus ne peut se produire que si les transformations bainitique inférieure ou martensitique sont précédées d'une transformation bainitique supérieure. Deux mécanismes ont été suggérés pour expliquer ce couplage ; le premier est basé sur un mécanisme de SIBM et le second sur un mécanisme que nous avons qualifié de « régression ». La seconde étape de la décomposition concerne les structures de type A et consiste en la disparition des joints de faibles désorientations rectilignes et donc de la structure en lattes. Ce processus ressemble à de la coalescence. Le produit de transformation, la bainite « décomposée » a donc au final la taille d'un ancien paquet bainitique, contient peu de défauts (dislocations ou joints) et présente une forme granulaire.
- L'évolution de la matrice ferritique s'accompagne d'une évolution de la microstructure de carbures. Cette maturation consiste en un processus de grossissement, une sphéroïdisation et la précipitation de carbures aux joints de la bainite décomposée. Nous avons montré que ces carbures étaient nécessairement de la cémentite et que leur composition n'évoluait pas lors de la sur-transformation. La précipitation filmogène est le dernier stade de la granularisation que nous avons pu observer.

Nos expériences en DRXHE sur grands instruments ont permis de suivre les cinétiques de transformation et de restauration de nos aciers. Nous avons pu montrer que cette dernière n'était pas corrélée directement avec l'étape 1 du processus de décomposition.

V. Références

[1] R.D.Vengrenovitch, Acta Metallurgica, 30, 1982, 1079-1086.
[2] G.Ghosh, G.B.Olson, Acta. Mater., 2002, 2099-2119.
[3] F.G. Caballero, M.K. Miller, C. Garcia-Mateo, C. Capdevila, S.S. Babu, Acta Materialia, 56, 2008, 188-199.
[4] H. Bhadeshia, Scripta Materialia 69, 2013, 409-412.
[5] C. N. Hulme-Smith, M. J. Peet, I. Lonardelli, A. C. Dippel & H. K. D. H. Bhadeshia , 31:2, 2015, 254-256.
[6] C. Garcia-Mateo, J.A. Jimenez, H.-W. Yen, M.K. Miller, L. Morales-Rivas, M. Kuntz, S.P. Ringer, J.-R. Yang and F.G. Caballero, Acta Materialia 91, 2015, 162-173.
[7] J. H. Jang, H.K.D.H. Bhadeshia and D-W. Suh, Scripta Materialia 68, 2013, 195-198.
[8] E. Honda, Z. Nishiyama, Sci. Rep. Tohoku Imperial Univ. 21, 1932, 299.
[9] J.W. Christian, Mat. Trans., JIM 33, 1992, 208.
[10] T. Ungar, G. Ribarik, G. Zilahi, R. Mulay, U. Lienert, L. Balogh, S. Agnew, Acta Materialia 71, 2014, 264-282.
[11] J. E. Bailey and P. B. Hirsch, Proc. Roy. Soc.267A, 1962, 11.
[12] M. Winning , G. Gottstein, L.S. Shvindlerman, Acta Materialia 50, 2002, 353-363.

Conclusions et Perspectives

Conclusion générale

Les microstructures bainitiques sont très complexes et diverses, et c'est ce qui explique pourquoi de nombreuses classifications ont en été proposées depuis Mehl en 1939, classifications dont les plus récentes se basent principalement sur des considérations de microtextures. Cependant, il n'y a actuellement pas de consensus dans la communauté scientifique actuellement sur ce sujet, ainsi que sur la nature de leurs mécanismes de transformation. Même la notion de latte peut susciter prête à la confusion en fonction de la technique de caractérisation utilisée. Dans la présente thèse, nous avons suivi principalement une approche cristallographique basée sur des observations en EBSD. Cette technique nous a permis une approche multi-échelle de microstructures en question, hautement hiérarchisées (PAGS, paquets, blocs, sous-blocs, lattes).

Nos travaux ont été consacrés aux évolutions microstructurales (cinétiques et mécanismes) des bainites en lattes, en conditions isothermes, et obtenues à partir d'alliages modèles FeNiC et FeNiMnC.

Nous avons dans un premier temps, caractérisé finement les structures bainitiques obtenues à différentes températures, et mis en évidence, par des approches de reconstruction numériques (MERENGUE2, DECRYPT), que l'on pouvait distinguer deux produits de transformation différents dans ces structures à l'échelle d'un paquet. Elles peuvent contenir:

- Des structures de type A : caractérisées par un nombre de blocs ≤ 3 par paquet. Il s'agit là de la description typique d'une bainite supérieure en lattes
- Des structures de type B : caractérisées par un nombre de blocs ≥ 4 par paquet, et il s'agit de la description typique d'une bainite inférieure en lattes, qui est valable aussi pour la martensite.

Ce nombre de blocs par paquet est selon nous un critère fiable pour quantifier les fractions respectives de ces structures dans notre microstructure mixte (dans nos échantillons BHT, BMIXTE et B-M par exemple).

Dans un deuxième temps, nous avons montré que les microstructures constituées uniquement de bainites inférieures et de martensite (donc uniquement de type B) ne subissent aucune évolution morphologique ou microtexturales significative quand elles sont soumises à nos maintiens isothermes de sur-transformation pour les bainites (même à des températures bien supérieures à leurs températures de transformation) ou à des revenus pour les martensites. Leur faible baisse de dureté est probablement due à un processus de restauration et de grossissement des carbures.

En revanche, toutes les microstructures étudiées contenant une fraction significative de bainite supérieure (donc des mélanges de type A et B, voire uniquement du type A) montrent une évolution remarquable lorsqu'elles sont maintenues en sur-transformation ou vieillies même à plus basse température. Cette évolution se caractérise par un processus de décomposition de la matrice ferritique, qui affecte toute la microstructure, y compris les structures de type B, pourtant attendues comme stables dans les conditions étudiées, et par une maturation des carbures.

Nous avons qualifié ce processus de « granularisation » et proposé une méthode numérique basée, sur de la reconstruction austénitique, pour le quantifier.

Nos expériences sur les microstructures mixtes modèles (mélanges de type A et B), que nous avons imaginées, produites et vieillies, ont permis de préciser la nature des mécanismes de la granularisation. Le processus de décomposition des structures en lattes de type B se déroule en deux étapes :

- La disparition des joints de fortes désorientations laissant des sous-joints faiblement désorientés rectilignes (en bref, une structure aciculaire de type A). Il est à noter qu'à partir d'observations microstructurales, nous avons suggéré deux possibles mécanismes expliquant comment ces joints peuvent être consommés par une structure de type A; un mécanisme analogue à de la SIBM ou un mécanisme de « régression ». Nos mesures de cinétiques de restauration in situ montrent que ce processus n'est pas corrélé à la restauration.
- La disparition des joints de faibles désorientations rectilignes, et donc de la structure en lattes résiduelles de type A. Ce processus ressemble à de la coalescence et touche aussi, dès le début des maintiens isothermes, la bainite supérieure de nos mélanges (de type A elle aussi). Le produit de transformation, la bainite « décomposée », a donc au final la taille d'un ancien paquet bainitique, qui contient peu de défauts (dislocations ou joints) et présente une forme granulaire. Ce processus est plus rapide que ne le laisse entendre les modèles de la littérature sur la mobilité des joints de faibles désorientations.

L'évolution de la matrice ferritique s'accompagne d'une maturation de la microstructure de cémentite. Elle consiste en un processus de grossissement, une sphéroïdisation et la précipitation de films de cémentite aux joints de la bainite décomposée. Par contre, nous avons établi que sa composition n'évoluait pas lors de la sur-transformation. La précipitation filmogène est le dernier stade de la granularisation que nous avons pu observer, et est corrélée à la décomposition de la matrice ferritique.

Notre étude permet d'ouvrir une réflexion sur la classification des bainites au sens où nous avons montré que l'on pouvait obtenir, sur des temps très courts, même avant la fin d'une transformation en condition isotherme, une microstructure granulaire. Autrement dit, il n'est pas exclu qu'une grande partie des bainites granulaires, qualifiées comme telles dans la littérature, soient en réalité des bainites en lattes granularisées. C'est pourquoi, d'ailleurs, on ne les observerait qu'en refroidissement continu, car de la bainite supérieure serait nécessaire pour enclencher le processus. Ceci rejoint les travaux de Cizek et al. qui suggèrent que la bainite granulaire peut se former à partir d'une dégénérescence de ferrite aciculaire.

Cette réflexion pourrait donc être un point de départ pour permettre de rationaliser la classification des bainites, mais aussi de mieux préciser les conditions de transformations des bainites granulaires.

Enfin, avec les travaux présentés essentiellement en annexes, nous avons montré que ce processus de granularisation adoucissait de façon notable les microstructures bainitiques, plus que le processus de restauration seul. Toutefois, il semble que la cinétique du processus dépende fortement de la composition en éléments substitutionnels de l'alliage (Mn en particulier pour ses effets sur la mobilité des joints). Il est donc en pratique possible de le reporter et probablement de l'éviter.

Perspectives

Notre étude offre de nouvelles perspectives de recherche.

Nos mécanismes susceptibles d'expliquer la disparition des joints de fortes désorientations peuvent certes expliquer une partie des observations en EBSD, mais sont largement encore perfectibles. Il s'agit en l'état de propositions qu'il faudrait approfondir.

Des observations in situ en MET que nous avons tentées aurait peut-être permis par exemple de mieux étudier la dynamique et la mobilité de nos joints observés seulement post mortem.

De même, si le processus de « régression » se déroule comme nous le pensons, il devrait conduire à ce que l'extrémité des ilots résiduels présentent des joints de faible énergie minimisant la pression exercée par le variant principal. Il faudrait aussi caractériser en 3D EBSD nos microstructures en résolution améliorée afin de pouvoir confirmer si nos paquets peuvent ou non réellement présenter des caractères mixtes avec ce variant principal.

Un autre travail intéressant serait de déterminer quelle est la quantité minimale de bainite supérieure nécessaire pour initier le processus. Cette démarche nécessiterait aussi de pouvoir mieux quantifier les fractions de bainites granulaires dans des structures mixtes, en cours de décomposition. Il faudrait développer dans cette optique un algorithme de type « Smart Kernel » pour détecter les contours de domaines granulaires en contact avec des domaines en lattes.

Au cours de ce travail, nous avons principalement quantifié la décomposition de la matrice ferritique de nos aciers, peut-être au détriment de la maturation des carbures, qui a été plus abordée sous un angle qualitatif.

Nous avons identifié au moins deux aspects qui mériteraient des investigations plus poussées. Le premier concerne le couplage entre décomposition et précipitation. La précipitation des films de carbures en compétition avec le grossissement des carbures inter-paquet ne peut se comprendre que si les joints présentent de fortes différences de diffusivité, or cela n'est pas forcément établi. Le second concerne la composition des carbures, hors équilibre, qui n'évolue pas malgré le grossissement. On soupçonne que des conditions d'interfaces particulières soient à l'œuvre. Des mesures en sonde atomique tomographique ou en EDS MET des gradients de composition aux interfaces ou aux joints, permettraient peut-être de statuer sur ces deux aspects.

Bien entendu, nous aurions espéré pouvoir étudier des microstructures vieillies sur des temps plus longs (paramètres de Hollomon Jaffe supérieure à 15-18) pour pousser les mécanismes identifiés à l'extrême et pourquoi pas solliciter d'autres mécanismes.

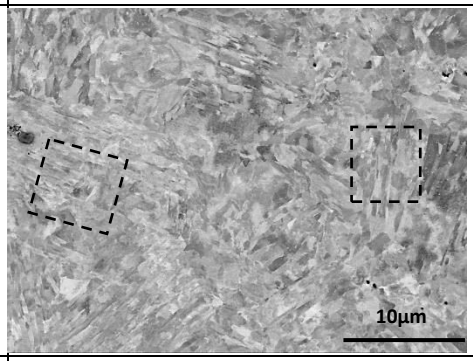
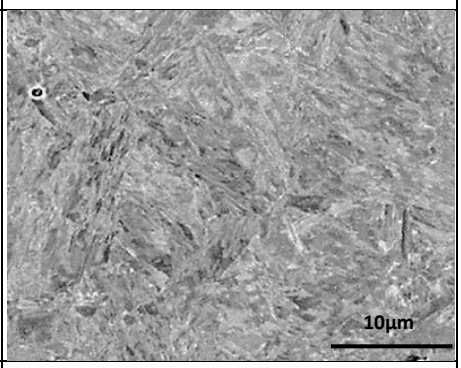
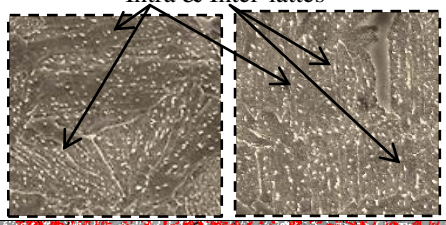
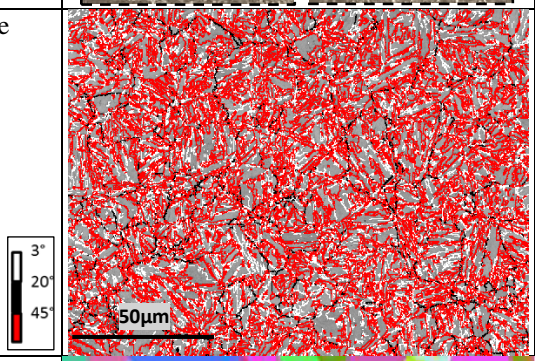
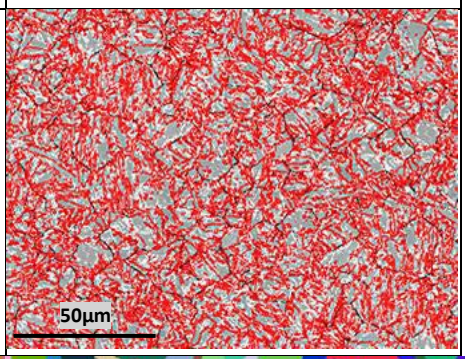
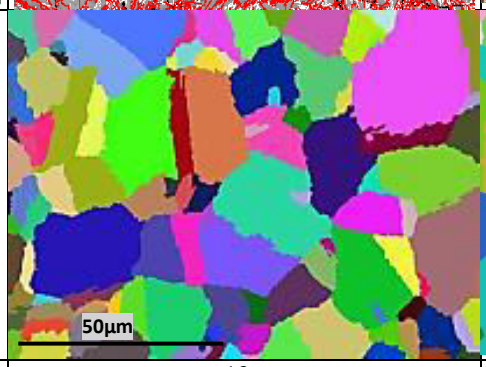
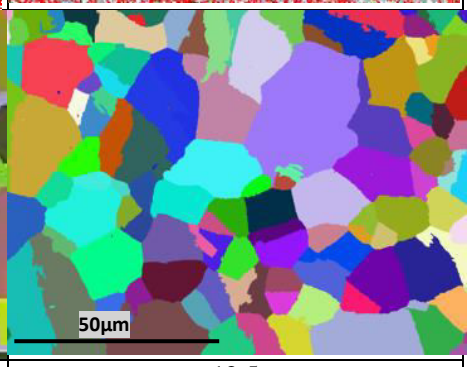
Enfin, la grande variété de structures rencontrées dans nos aciers (joints de la matrice ferritique, carbures et dislocations) offre l'opportunité de mieux de comprendre leurs effets respectifs sur les propriétés de résistance et d'écrouissage. En effet, mis à part des essais de dureté, nous avons réalisé peu d'essais mécaniques complexes sur nos microstructures particulières.

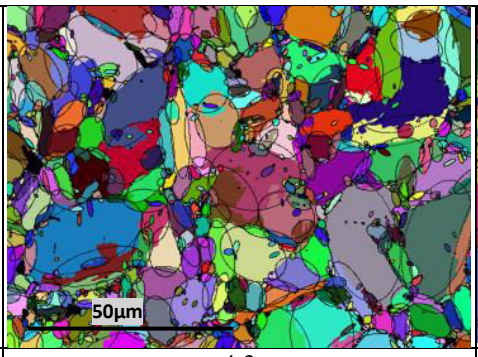
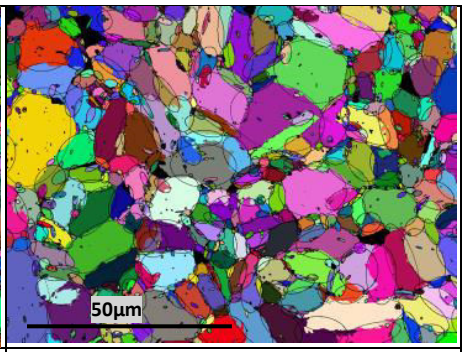
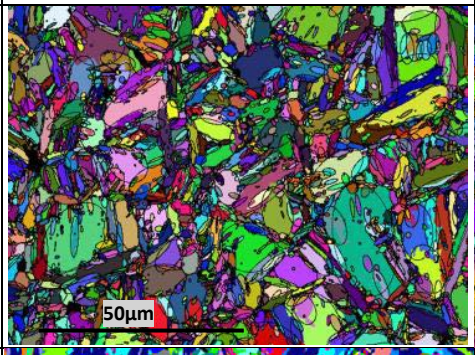
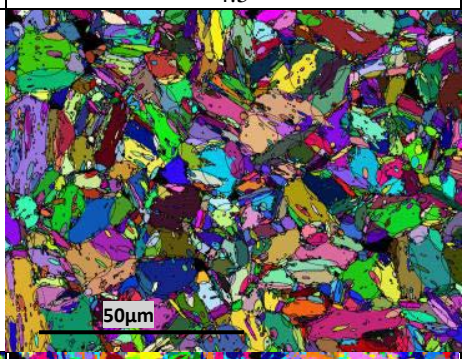
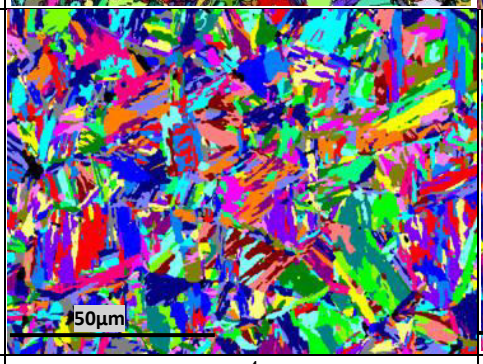
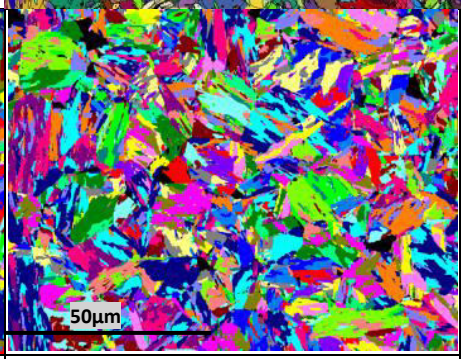
Annexe1 : Analyse microstructurale et cristallographique des microstructures bainitiques et martensitique de la nuance N2

Les microstructures initiales (avant sur-transformation ou revenu) ont été caractérisées avec la méthodologie du chapitre précédent.

Le tableau IV.2 récapitule les résultats issus de l'étude morphologique et microtexturale des deux microstructures initiales (avant vieillissement) de BBT et M. Nous observons dans les deux cas des microstructures en lattes fines. D'après les images en BSE, les largeurs de lattes varient de 300 nm à 900 nm avec parfois la présence de lattes larges dépassant les 1µm. Les carbures ont été seulement observés pour la BBT où nous avons noté la présence à la fois de carbures inter et intra-lattes. La microstructure de la BBT est donc associée à une **bainite inférieure**.

Les cartes EBSD de la BBT et de la M mettent en évidence des microtextures également en lattes. Les joints de lattes sont majoritairement désorientés de 60° avec la même dispersion des axes de rotation mise en évidence pour la nuance N1. Ensuite, la même procédure de reconstruction détaillée au chapitre III a été appliquée. Elle a permis de déterminer les ROs, les arrangements spatiaux des variants cristallographiques, ainsi que les tailles des différents domaines (PAGs, Paquets, Blocs et sous-blocs). L'analyse a montré que les deux microstructures sont de type B avec un nombre de blocs par paquet largement supérieur à égal à 4. La microstructure BBT de N2 est donc très analogue à celle de N1, il s'agit donc d'une **bainite inférieure**. Compte tenu des teneurs respectives en carbone de N1 et N2, la fraction de carbures est toutefois probablement plus faible dans l'acier N2.

	Bainite inférieure	Martensite
Température de transformation bainitique/ Ms	380°C	365°C
Imagerie BSE des lattes		
Type de carbures	Intra & Inter-lattes 	Non étudiés
Cartographies de désorientations EBSD		
Reconstruction de l'austénite (code de couleurs aléatoire)		
Taille de PAG (µm)	13	12.5
OR (Angles d'Euler)	(3.4°, 46.1°, 6.4°)	(3.7°, 46.1°, 6°)
Désorientations théoriques par paquet	60°<110>, 60°<445>, 55°<110>, 4.9°<450>	60°<110>, 60°<556>, 54.5°<110>, 5.7°<340>
Taille de paquet (µm)	8.2	7.9

Arrangement en paquets (code de couleurs aléatoire)		
Taille de bloc (µm)	4.3	4.5
Arrangement en blocs (code de couleurs aléatoire)		
Arrangement en variants (une couleur par variant)		
Nombre de blocs par paquet	>>4	>>4
Type A/B	Type B	Type B

Tab.A1.2 : Comparaison entre les microstructures des échantillons BBT et M observés en MEB en BSE et Cartographies en EBSD. Les données ESBD ont été post-traitées par Merengue2 pour reconstruire les anciens grains austénitiques, les blocs et les variants. Ce travail de reconstruction comparable à celui mené au chapitre III sur la nuance BBT de la nuance N1 a permis de déterminer les ROs, les épaisseurs de lattes, les tailles de paquets, de blocs et de PAG, le nombre de blocs moyens par paquet et le type A ou B. Aux carbures près, les deux microstructures sont très semblables du point de vue de la matrice ferritique.

Dans l'acier **N2** Fe-0.13C-5Ni, et d'après la dilatométrie, la transformation de la BHT se termine après 23s. La cartographie EBSD de la figure IV.8.a montre que la microstructure juste après transformation est déjà grossière en termes de taille et de morphologie polygonale. Elle est composée de domaines cristallographiques larges comportant des lattes faiblement désorientées repérable à partir du contraste de bande. Un agrandissement de ces domaines est présenté dans l'encadré noir. Ces domaines sont associés à de la **bainite supérieure** par analogie avec celle détectées dans la BHT de la nuance N1 (cf. Chapitre III. § II.2.1)**.** Elle contient aussi régions granulaires et sans faibles désorientations internes. L'encadré jaune montre une telle structure granulaire. L'analyse EBSD couplée à Merengue2 de la microstructure obtenue, n'a permis de reconstruire que 60% de la microstructure. La figure IV.8.b montre le résultat de ce travail de reconstruction. Nous constatons en comparant les

figures avant et après reconstructions que seuls les domaines contenant les lattes ont été reconstruits (joints de faibles désorientaion). La RO moyenne qui permet d'avoir ce taux maximal de reconstruction est donnée par les angles d'Euler (4.2°, 46.6°, 5.3°). Elle prédit les désorientations spécifiques suivantes entre blocs et sou-blocs au sein d'un paquet : 60°<110>, 60°<556>, 54.3°<110>, 5.7°<450>. La suite de l'analyse Decrypt donne des tailles moyennes des PAGs, paquets et blocs de 15, 8.5, et 5 µm respectivement. 84% de la partie reconstruite de cette BHT est constituée de paquets contenant au plus 3 blocs.

Cette structure bainitique étant déjà majoritairement granulaire, nous avons décidé de ne pas étudier son vieillissement. Toutefois, la similitude entre cette microstructure et celle vieillie à partir d'une structure 100% en lattes et l'absence de bainite inférieure pose question. Une possible explication est que la structure observée après 23 s est déjà partiellement décomposée y compris sur des temps extrêmement courts. Les paramètres de Hollomon-Jaffe sont similaires dans les deux cas (12.80 pour la BHT-ST/200s, 13.24 pour la BHT-ST/950s et 13.14 pour le BHT de la nuance N2). La concomitance entre transformation bainitique en lattes et le processus de décomposition peut possiblement expliquer pourquoi on observe des bainites granulaires aux températures de transformations élevées.

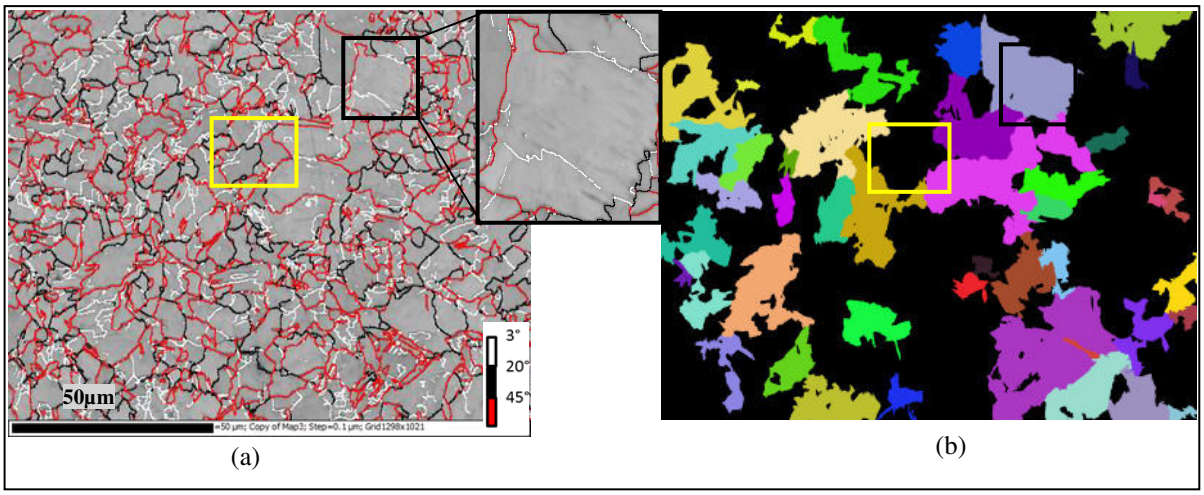


Fig.A1.1 : (a) Cartographie EBSD des échantillons BHT (transformée à 470°C/23s) montrant les joints de désorientations. Le code couleur est le même que celui proposé au chapitre III. (b) reconstruction des anciens grains austénitiques par MERENGUE2 du même champ. Le code couleur est le même que celui proposé au chapitre III (en noir, les zones non-reconstruites)

Annexe2 : Décomposition d'une structure BMIXTE de la nuance N3

Sur la nuance au manganèse N3 (Fe-0.33%C-1%Mn-2.5%Ni), nous avons seulement mené une étude microstructurale en EBSD. Les échantillons analysés et leurs traitements thermiques respectifs sont décrits dans le tableau A2.1.

Echantillons après transformation	Température de transformation	Temps de transformation
BBT	340°C	110 s
BHT	450°C	40s
Echantillons Revenus ou Sur-Transformés	Traitement Thermique Température / Temps	
BMIXTE	450°C/10s + 340°C /180s	
BMIXTE-ST-1	450°C/10s + 340°C / 5h	

Tab.A2.1 : Traitements thermiques réalisés et dénominations des échantillons correspondants sur la nuance N3 : tous les maintiens isothermes sont appliqués suite à une austénitisation à 900°C/5min suivie d'un refroidissement jusqu'aux paliers bainitiques, permettant d'éviter la formation de ferrite (comme a été expliqué au chapitre II § II).

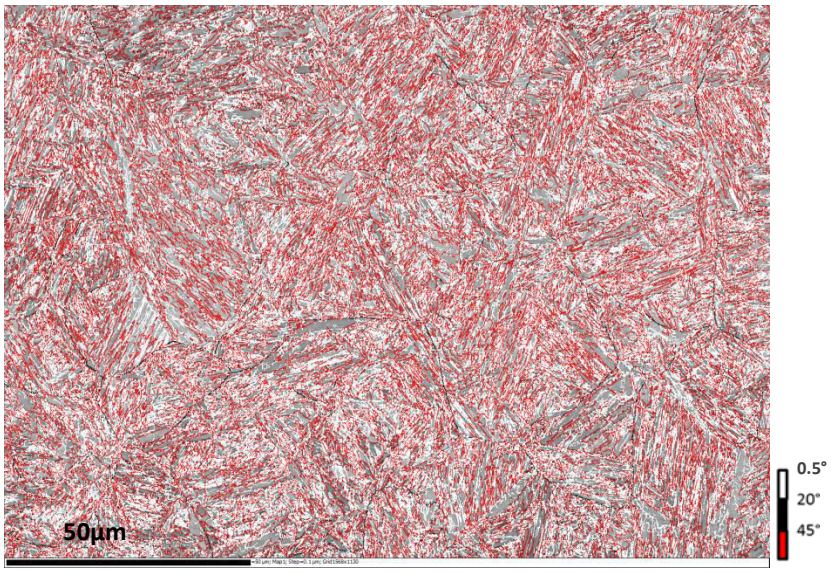
Comme pour les nuances N1 et N2, nous avons travaillé sur des microstructures obtenues par traitement isotherme à haute température (BHT) et basse température (BBT) respectivement, mais aussi sur une structure mixte (BMIXTE) obtenue par un traitement étagé.

La figure A2.1 montre respectivement les cartographies EBSD de la BBT (Fig.A2.1.a) et de la BHT (Fig.A2.1.b) obtenues pour la nuance N3. La température de transformation de la BHT pour cette troisième nuance a été prise 40°C supérieure à celle de la transformation de la BHT N2, ceci pour assurer que la microstructure soit très majoritairement bainitique supérieure (Type A). Pour la BBT, nous notons la prédominance des joints fortement désorientés, donc des joints de blocs à 60° (en rouge sur la carte EBSD des désorientations). Pour la BHT, nous remarquons au contraire, la présence majoritaire de joints de lattes faiblement et très faiblement désorientés (<10° et jusqu'à 0.5°).

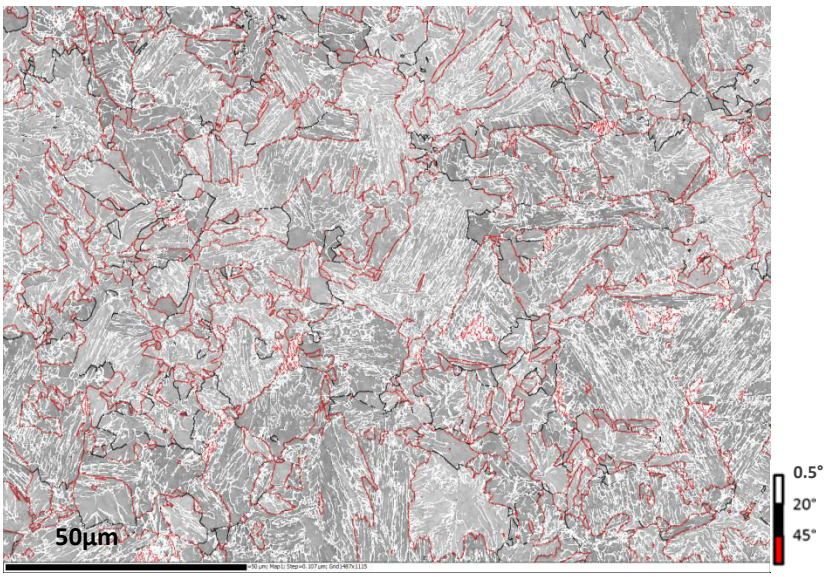
La figure A2.1.c montre les histogrammes des désorientations angulaires respectifs des deux cartes EBSD. En cohérence avec les microtextures observées, celui de la BBT (en bleu) est caractérisé par un pic important à 60° (0.35) alors qu'il est très faible (0.07) pour la BHT (en jaune). En revanche, la fraction aux faibles angles de désorientation est plus élevée pour la BHT comparée à la BBT.

La microstructure de BHT a donc bien la microtexture d'une bainite supérieure en lattes (type A); elle n'est pas un mélange de bainites inférieure et supérieure comme dans le cas de la BHT de la nuance N1. La microstructure BBT a la microtexture d'une bainite inférieure en lattes (type B).

(a)



(b)



(c)

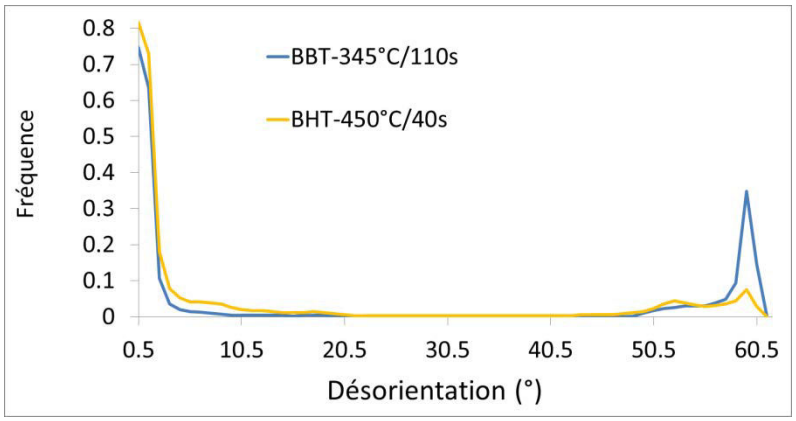
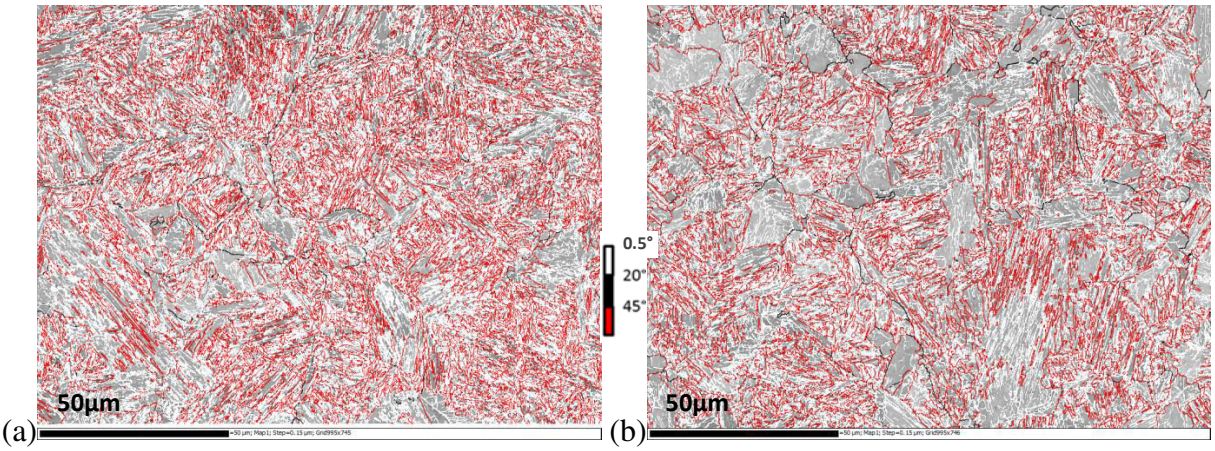


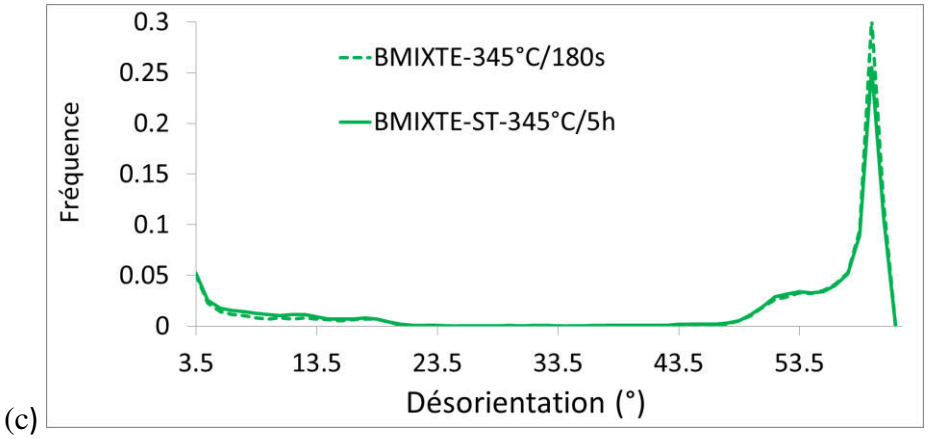
Fig.A2.1 : Cartographies EBSD des échantillons en résolution améliorée des échantillons (a) BBT transformé à 340°C/110s et (b) BHT transformé à 450°C/40s, de la nuance N3 (selon le code de couleur indiqué sur la figure) (c) Histogrammes des désorientations angulaires associés aux cartes EBSD.

Intéressons-nous maintenant à la sur-transformation de la microstructure BMIXTE. Celle-ci a été conçue de telle façon à contenir de 35% de BHT et 65% de BBT (d'après la dilatométrie).

Sur la figure A2.2 (a) et (b), nous montrons les cartes EBSD acquises respectivement sur les échantillons BMIXTE et BMIXTE-ST-1, dont les traitements thermiques sont décrits au tableau A2.1. L'évolution majeure qui a eu lieu lors de la sur-transformation pendant 5 h de la bainite mixte est la disparition d'une fraction non négligeable des joints de blocs désorientés majoritairement à 60°. Les figures A2.2.c et d présentent la superposition les histogrammes des désorientations angulaires associés à ces deux cartes EBSD, respectivement sur l'intervalle des très faibles désorientations [0.5° - 3.5°] et pour le reste des désorientations [3.5° - 61.5°]. La première montre clairement une diminution du pic à 60° d'une valeur de 0.3 pour la BMIXTE, à une valeur de 0.25 pour la BMIXTE sur-transformée. Cette diminution est bien inférieure à celle observée entre la BMIXTE et la BMIXTE-ST-2 de la nuance N1 (0.23 à 0.14) vue au chapitre V § II, et ceci malgré des paramètres de Hollomon-Jaffe H_{HJ} identiques de 12.7 et des microstructures initiales très similaires (35% de type A). La seconde figure montre que les joints de très faibles désorientations (joints de sous-blocs) ne subissent aucune évolution observable en EBSD au bout de 5 h de sur-transformation. La décomposition de la matrice ferritique est donc à peine commencée (étape 1) après 5 h.

Ce résultat sur la nuance N3 confirme que le processus de granularisation n'est pas spécifique aux nuances modèles FeNiC mais que sa cinétique dépend beaucoup de la composition de l'alliage en éléments substitutionnels (alors que la sensibilité à la teneur en carbone était moins évidente).





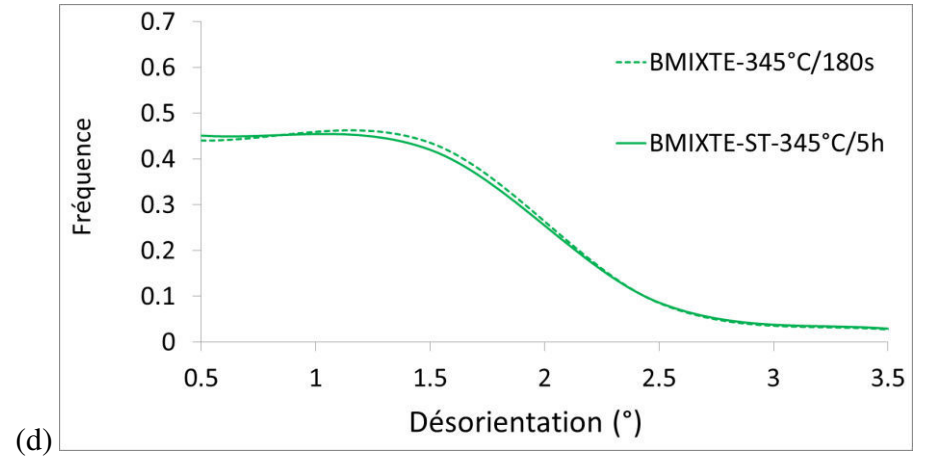


Fig.A2.2 : Cartographies EBSD des désorientations des échantillons (a) BMIXTE et (b) BMIXTE-ST-1 de la nuance N3 (selon le code de couleur indiqué sur la figure). Histogrammes des désorientations angulaires associés aux cartes EBSD (c) entre 3.5° et 61.5° et (d) entre 0.5° et 3.5°.

Annexe3 : Propriétés de traction

Les propriétés mécaniques de certains échantillons traités en bain de sels (BMIXTE de la nuance N2) ont été mesurées en traction à Arcelormittal Maizières selon le protocole décrit au chapitre II. La figure A3.1 montre les évolutions des propriétés de traction en fonction du temps de transformation et de sur-transformation.

La microstructure initiale présente une résistance mécanique d'environ 800 MPa et une dureté de 265HV. Après 30 min de transformation, le taux de granularisation passe de 24% à 61%. Les propriétés mécaniques chutent, montrant alors une résistance mécanique de 730 MPa (environ -10%) et une dureté de 221 HV (environ -15%). En parallèle, la ductilité de l'acier augmente avec des allongements totaux qui passent de 12.7 à 15.3%. Après la diminution rapide lors des 30 premières minutes, la dureté ne semble plus évoluer significativement, et ce malgré un taux de granularisation qui passe à 90%. Comme différentes composantes de la microstructure peuvent contribuer à cette diminution (densité de dislocations, de joints mais aussi maturation des carbures), il est difficile de designer le facteur prépondérant dans cette baisse des résistances.

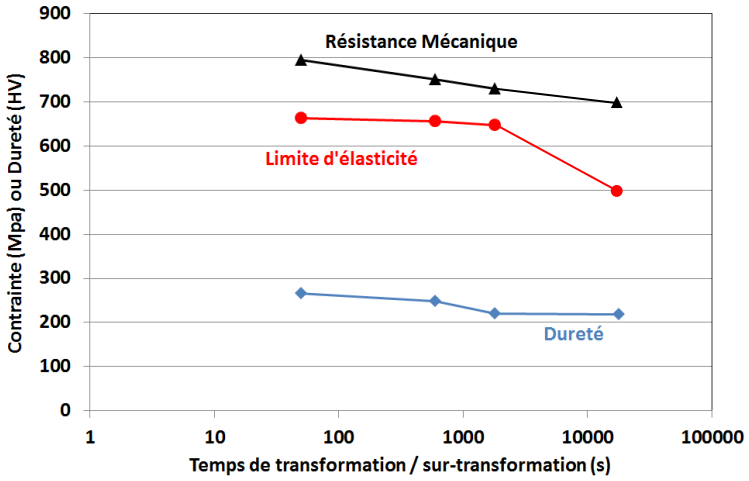


Fig A3.1 : Evolution des paramètres conventionnels de traction (résistance mécanique et limite d'élasticité à 0.2%) et de la dureté de la microstructure BMIXTE en fonction du temps de transformation / sur-transformation. Les quatre points correspondent respectivement aux échantillons BMIXTE, BMIXTE-ST1, BMISTE-ST2 et BMIXTE-ST3.

Si on compare les évolutions de duretés obtenues lors des sur-transformations des échantillons BBT, BHT et BMIXTE de la nuance N1 et celles de la BMIXTE N2, on s'aperçoit que la décomposition de la microstructure joue certainement un rôle prépondérant. La dureté de la BBT N1 à 340°C décroit faiblement après 5 h de sur-transformation. Cette faible décroissance ne peut s'expliquer que par de la restauration et le grossissement des carbures (pas de décomposition). En revanche, pour la microstructure BHT N1 à 410°C qui granularise fortement (91% granulaire après 870s) on observe une baisse des duretés très similaire à celle observée dans la BMIXTE N2 (61 % granulaire après 30 min). Dans le cas intermédiaire, on retrouve la BMIXTE N1 dont la granularisation a tout juste débuté après 30 min (2% granulaire). La perte de dureté présente un rythme plus rapide que pour la BBT N2 sur-transformée pourtant à la même température (La BMIXTE N1 présente pour rappel une microstructure à 15% granulaire après 5h).

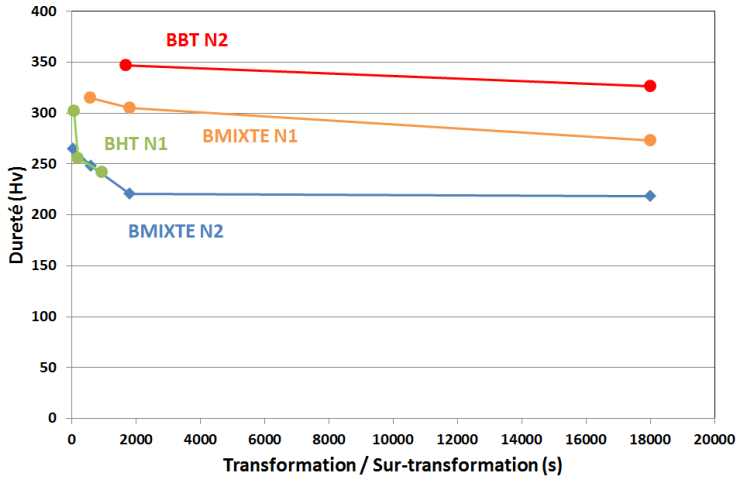


Fig. A3.2 : Evolutions des duretés dans les échantillons des échantillons BBT, BHT et BMIXTE de la nuance N1 et celles de la BMIXTE N2 en fonction des temps de transformation ou de sur-transformation.

Sur la figure A3.1, la seule propriété qui ne semble peu ou pas affectée par la sur-transformation est la limite l'élasticité. Cette représentation est toutefois trompeuse. En effet, la figure A3.3 présente les courbes de traction vraie correspondantes. La forme des courbes de traction et leurs taux d'écrouissage varient significativement. De plus, on peut observer clairement des plateaux de Lüders sur les courbes après sur-transformation qui expliquent la limite d'élasticité constante malgré une diminution globale des contraintes d'écoulement.

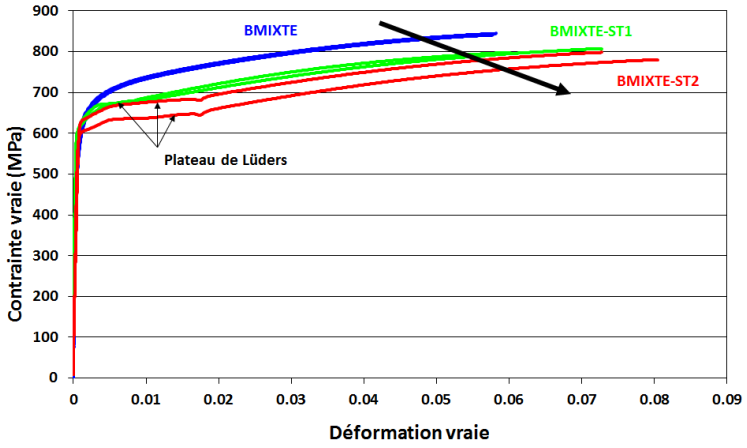


Fig A3.3 : Courbes de traction vraie des échantillons de la figure A3.1. La flèche noire représente l'effet du temps de sur-transformation. Les courbes de traction des échantillons BMIXTE-ST1 et ST2 présentent des paliers de Lüders.

Annexe4 : Données statistiques au MET sur la structure cristalline des carbures

Pour confirmer statistiquement le résultat obtenu au chapitre V § 1.2.2, nous avons fait diffracter en même temps un grand nombre de carbures sur des répliques extractives en sélectionnant un grand champ 12x12 µm². Le cliché de diffraction obtenu est alors constitué d'un ensemble d'anneaux concentriques, très similaires aux anneaux de Debye-Scherrer que nous avons observé en DRXHE. La figure A4.1.a montre trois exemples de micrographies MET en champs clair et les clichés de diffraction obtenus sur les mêmes champs. En l'absence de matrice, seuls les carbures contribuent au diffractogramme 2D (anneaux et tâches de diffraction isolées). Les carbures prélevés dans les différents échantillons de BMIXTE (N2) présentent des morphologies et des tailles diverses. Une dizaine de champs a été analysé de cette façon. La figure A4.1.b montre un quatrième exemple de champ analysé et explique la première étape d'indexation des anneaux. Celle-ci consiste à mesurer les distances d_{hkl} des tâches de diffraction les plus intenses sur chaque anneau. Ce travail a été réalisé sur le logiciel commercial Gatan Digital Micrograph. Dans une deuxième étape, nous avons comparé ces distances expérimentales avec les distances théoriques attendues de la cémentite, détaillées par les travaux de Sterling B. Hendricks [1] et Downs et al. [2]. Cette comparaison a permis de vérifier que toutes les distances d_{hkl} expérimentales se trouvent dans la liste théorique pour la cémentite, et de conclure que le seul type de carbures présent dans nos échantillons est la cémentite.

Références :

[1] Sterling B. Hendricks, The Crystal Structure of Cementite, 1930.

[2] American Mineralogist 78, 1104-1107, 1993.

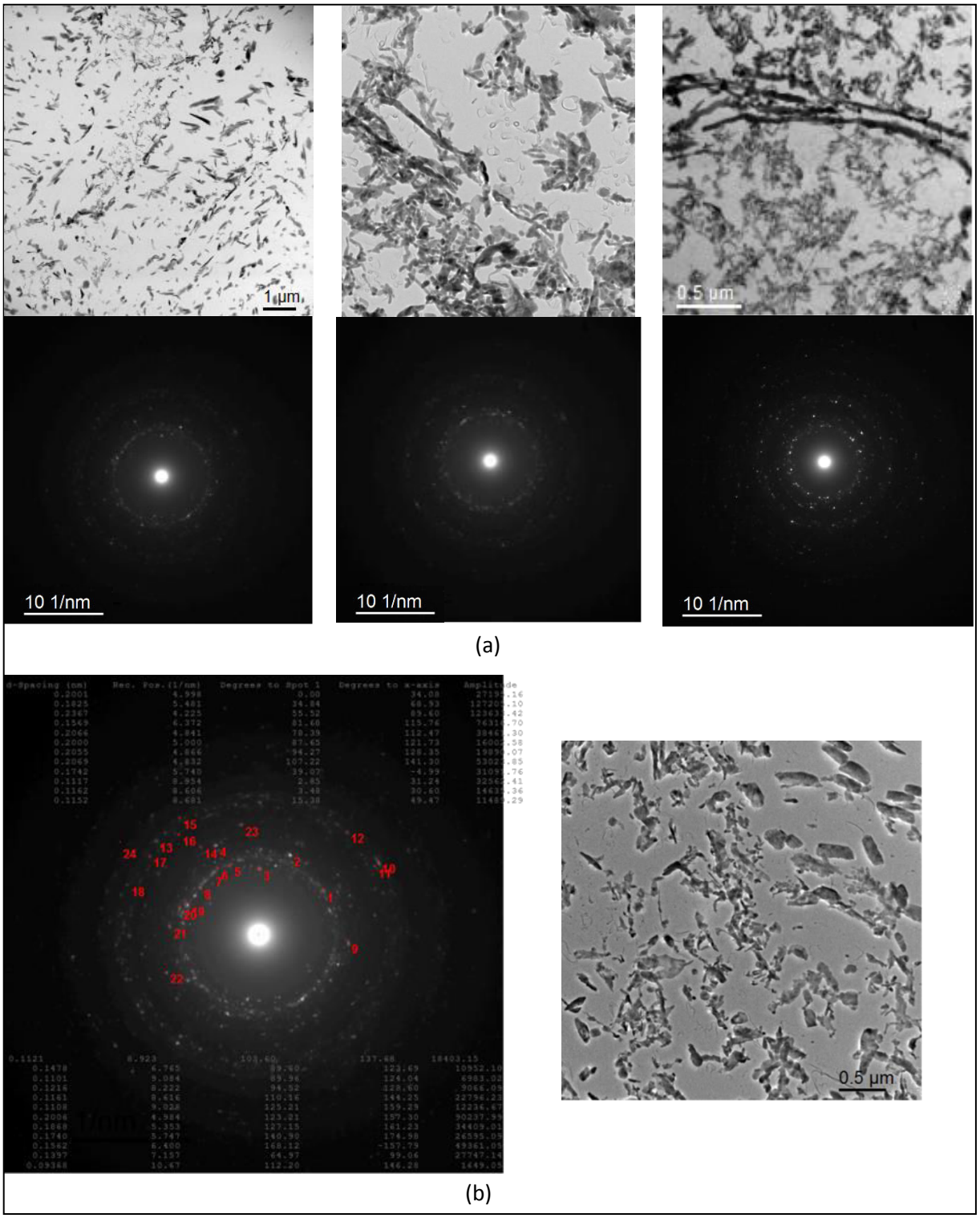


Fig.A4.1 : (a) micrographies MET en champs clair et anneaux de diffraction en SAED sur la même zone. Expériences sur répliques extractives d'échantillons BMIXTE et BMIXTE-ST2 et ST3 de la nuance N2. Les carbures apparaissent en contraste sombre. (b) idem avec mesure des distances inter-réticulaires pour les tâches de diffraction les plus claires avec le logiciel Gatan Digital Micrograph.