

## Effet de la température sur la microstructure des couches d'oxydes formées sur l'acier extra dur durant le processus de laminage à chaud

### Effect of temperature on the microstructure of the oxide layers formed on the high carbon steel during hot rolling process

Abdallah Haouam<sup>1\*</sup>, Amine Makni<sup>2</sup>, Jérôme Favergeon<sup>3</sup> & Gérard Moulin<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire de Mécanique Industrielle, Département de Génie Mécanique, Université Badji Mokhtar, BP 12, Annaba, 23000, Algérie.

<sup>2</sup>Laboratoire de Modélisation, Mécanique et Productique, Ecole Nationale d'Ingénieurs de Sfax, B.P. W3038, Sfax, Tunisie.

<sup>3</sup>Laboratoire Roberval, Centre de Recherches Royallieu, BP 60529, Université de Technologie de Compiègne (UTC), Compiègne, 60200, France.

Soumis le : 28.02.2015

Révisé le : 12/05/2015

Accepté le : 26/05/2015

#### ملخص

أثناء عمليات الدرفلة على الساخن، يتم تشكيل طبقة أكسيد تسمى كالامين على سطح الفولاذ عن طريق الأكسدة في درجة حرارة عالية. باستخدام اختبار الانحناء لمحاكاة التماس الميكانيكي الذي يتعرض له ألواح الفولاذ أثناء تسلسل المتداول في درجة حرارة تتراوح بين 900 درجة مئوية و 650 درجة مئوية. تم استخدام المجهر الإلكتروني لتحليل مساحة عينات من الفولاذ تم الحصول عليها بعد الانحناء تحت جو مسيطر عليه. هذا التحليل يظهر أن درجات حرارة تكون طبقة الأكسيد و التماس الميكانيكي لهما تأثير فعلي على سلوك النظام فولاذ- كالامين. سطح العينات التي تم الحصول عليها تحت الجو الرطب لها سلوك أكثر البلاستيك من تلك التي تم الحصول عليها تحت الجو الجاف.

الكلمات المفتاحية: الدرفلة على الساخن- اختبار الانحناء- الفولاذ- الأكسدة- كالامين.

#### Résumé

Un essai de flexion quatre points est utilisé pour simuler la sollicitation mécanique à laquelle sont soumises les brames d'acier pendant la séquence de laminage dans une plage de température comprise entre 900°C et 650 ° C. L'examen par MEB de la surface des spécimens testés en flexion sous une atmosphère contrôlée fournit des informations supplémentaires sur la fissuration de la bande d'oxyde, sur le type de défaillance et sur les différents défauts. Cette analyse montre que les températures de formation de la couche d'oxyde ou calamine et la sollicitation mécanique ont une influence significative sur le comportement du système acier-calamine. Les couches d'oxydes obtenues sous une atmosphère humide ont un comportement plus plastique que celles obtenues sous une atmosphère sèche.

**Mots clés :** Laminage à chaud- Flexion 4points - Acier- Oxydation- Calamine

#### Abstract

A four bending test is used to simulate the mechanical solicitation subjected by the steel slabs during the rolling sequence in a temperature range between 900°C and 650°C. The review by SEM of the surface of the specimens deformed provides additional information on the cracking of the oxide band, on the type of failure and the different faults. It is shown that the temperatures of formation of the oxide layer and mechanical solicitation have a significant influence on the behavior of the system steel- calamine. Oxide coatings obtained under wet atmosphere have a behavior more plastic than those obtained under dry atmosphere.

**Keywords:** Hot rolling- Four point bending- Steel- Oxidation- Calamine

\*Auteur correspondant: abdallah.haouam@univ-annaba.dz

## 1. INTRODUCTION

Le laminage à chaud est un procédé de fabrication à chaud de tôles minces par déformation plastique. Cette déformation est obtenue par compression continue au passage entre deux cylindres contrarotatifs appelés laminoirs (Fig.1). Il consiste à produire à partir de lingots faisant 250 mm d'épaisseur, des tôles mines d'acier d'épaisseurs finales comprises entre 2 et 5 mm.

La gravelure est un défaut d'aspect qui peut apparaître lors du laminage à chaud d'une brame d'acier. Ce défaut est généré par la destruction, puis par l'incorporation dans le métal du film de la calamine qui se développe en température entre chaque passe [1]. Afin d'éviter ce type de défauts de surface, il est nécessaire de quantifier les défauts mécaniques et les évolutions chimiques de la couche d'oxyde formée lors du laminage. Par conséquent, l'étude des deux composantes du système formé par l'acier et la calamine est nécessaire lors des sollicitations mécaniques. En effet, la mise en forme des matériaux sous une atmosphère corrosive ou oxydante reprend les principes majeurs de la corrosion sous contrainte lesquels font que l'application d'une contrainte à un système métallique en cours d'oxydation, peut modifier à la fois les propriétés protectrices de son oxyde superficiel et le comportement global du système [2-3-4]. Il peut se produire des ruptures par fissuration à des valeurs de contrainte ou de déformation nettement inférieures à celles prévues par le comportement intrinsèque des métaux. Ceci implique la nécessité de la mise en évidence de paramètres qui interviennent comme la microstructure des oxydes et des substrats, la nature de l'atmosphère oxydante ou corrosive, le type de contrainte ou de déformation imposé [5-6].

L'objectif visé par ce travail est de compléter une étude antérieure sur l'analyse mécanique élaborée par G. Moulin et all [7] par une autre microstructurale des couches de l'acier extra-doux formées à la suite des essais de flexion quatre points réalisés à 650°C et à 900°C.

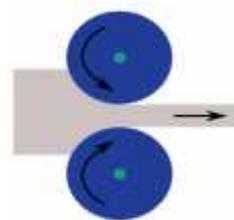


Figure 1: Principe du laminage à chaud

## 2. MATERIELS ET METHODES

### 2.1 Matériau

Les éprouvettes testées sont des tôles en acier extra-doux, obtenues par laminage à chaud et tronçonnées de façon à avoir des dimensions de 1x5x25mm. La face à oxyder est polie au papier abrasif grade 1200 et l'autre face est couverte d'une couche protectrice contre la corrosion par un dépôt de  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  comme l'illustre la figure 2.

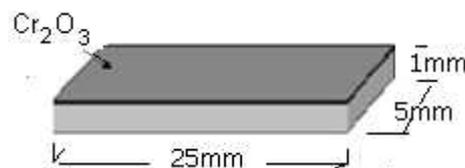


Figure 2: Schéma d'une éprouvette

Le tableau 1 résume la composition massique du matériau de l'étude.

Tableau 1. Composition massique du matériau

Fe	Mn	Al	Ni	Si	C
96.76	0.85	0.75	0.50	0.33	0.82

### 2.2 Déroulement des essais de flexion

L'échantillon est maintenu dans une enceinte confinée dans un tube en quartz dont les extrémités sont rendues étanches par des dispositifs de passage sous vide, des joints d'étanchéité et des vannes micrométriques. Le vide est obtenu durant les essais au moyen de deux pompes (primaire et secondaire); permettant une réduction de la pression jusqu'à  $10^{-6}$  mbar. La figure 3 montre un schéma de l'installation d'oxydation sous contrainte utilisée pour l'expérimentation.

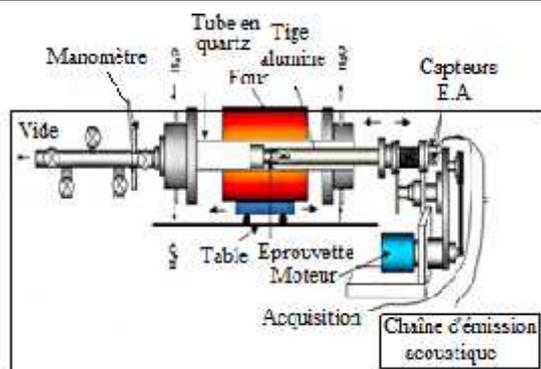


Figure 3: Schéma de l'installation d'oxydation

L'échantillon est inséré entre les deux mors fixe et mobile placés au sein d'une tige en alumine résistant aux hautes températures et possédant une inertie chimique vis-à-vis de l'oxygène. Une schématisation du montage de l'échantillon est montrée sur la figure 4.

Le déplacement des mors est imposé au cours des essais mécaniques à l'aide d'un moteur électrique situé à l'extérieur du montage, lequel est piloté par un ordinateur contenant un logiciel de programmation machine. Ce déplacement est mesuré à l'aide d'un capteur LVDT. Les valeurs de la force de réaction de l'éprouvette sont enregistrées suite à ce déplacement, à l'aide d'un capteur calibré en force, placé sur une tige métallique située en zone froide du montage [8].

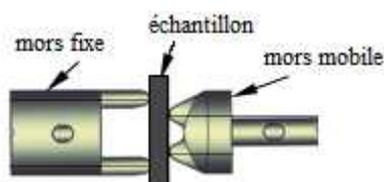


Figure 4 : Mors de maintien de l'échantillon

### 2.3 Protocole expérimental

Le processus de variation de la température en fonction du temps du protocole expérimental est illustré par la figure 5.

Ce protocole opératoire consiste en une montée en température sous azote (gaz inerte) jusqu'à 900°C. Avant d'effectuer l'oxydation à cette température, il est procédé à la stabilisation thermique pendant 15 à 20 min de l'échantillon afin d'avoir une température homogène dans tout son volume. L'oxydation est ensuite réalisée pendant 9 min sous l'air ambiant ou sous une vapeur d'eau. Par la suite, les tests de flexion sont réalisés sous azote aux températures d'essais sélectionnées : 900° C d'abord puis à 650 °C, indépendamment l'un de

l'autre. Ces tests sont précédés par des paliers de stabilisation variables en durée selon la température d'oxydation isotherme : 5 min à 900 °C et 15 min à 650 °C.

Le refroidissement lent de l'échantillon jusqu'à la température ambiante se fait à « four coupé ».

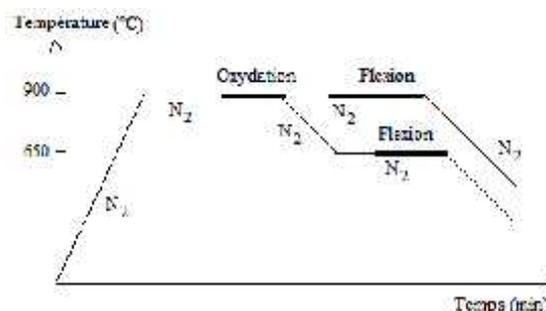


Figure 5 : Schéma du protocole expérimental

### 2.4 Analyse microstructurale

Plusieurs types d'endommagement peuvent se produire dans les couches d'oxydes au cours de la sollicitation mécanique : les décollements entre la couche et le métal ou entre les couches d'oxydes, l'apparition de fissures ou de microfissures dans la couche elle-même. Selon les propriétés de l'oxyde, ces défauts sont fonction de plusieurs paramètres tels que la température, la vitesse de sollicitation mécanique et le taux de déformation. L'examen en microscopie électronique à balayage de la surface des éprouvettes déformées, apporte des informations complémentaires sur la fissuration de la bande d'oxyde ainsi que sur le type de rupture et les différents défauts présents. L'analyse de la microstructure des éprouvettes a été effectuée sur des microscopes électroniques à balayage de type JEOL JSM 1600 et de type XL30 ESEM FEG.

## 3. RESULTATS ET DISCUSSION

### 3.1 Morphologie et microstructure de l'acier brut

Les microstructures obtenues après une attaque au nital de l'acier brut puis celles des aciers sollicités aux différentes températures d'étude sont représentées sur la figure 5. Le matériau présente de fortes irrégularités de structure et une faible taille de grains lorsqu'il est sollicité à 650 °C après un chauffage à 900°C (Fig. 6.c). Entre l'acier brut (non traité et non sollicité Fig. 6.a) et l'acier sollicité à 900°C (Fig. 6.b), la taille de grains semble être plus grande après

sollicitation. La présence de quelques irrégularités de microstructure représentées par des phases en forme de petites lamelles sont observées.

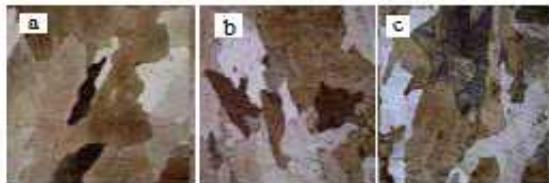


Figure 6 : Micrographies obtenues après attaque au nital de l'acier : (a) : non traité et non sollicité, (b) : sollicité directement à 900°C, (c) : sollicité à 650°C après chauffage à 900°C.

### 3.2 Morphologie et microstructure du système acier-oxyde sous différentes atmosphères

#### 3.2.1. Oxyde développé sous Azote

Les observations microscopiques, sur coupe, des oxydes formés et sollicités aux deux températures d'essai sous azote révèlent la présence de couches d'oxydes ayant une épaisseur moyenne de 33 $\mu\text{m}$  à 650 °C et de 28 $\mu\text{m}$  à 900°C (Fig. 7).

En raison des fortes différences du temps d'exposition de l'acier sous l'atmosphère environnante (azote) en température (temps beaucoup plus long à 650°C), l'oxyde formé à 650°C est plus épais que celui formé à 900°C. L'oxyde obtenu à 900°C présente plus de porosités et une meilleure adhérence au substrat avec de légers décolllements à l'interface métal- oxyde (Fig. 7.b), à l'inverse de l'oxyde sollicité à 650°C qui présente de faibles propriétés d'adhérences aux interfaces oxyde-oxyde et métal-oxyde (Fig. 7.a).

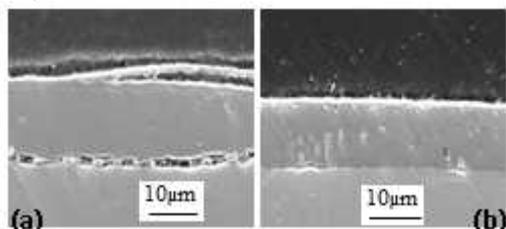


Figure 7 : Vues en coupes longitudinales des systèmes oxydés sous azote et sollicités (a) : à 650°C, (b) : à 900°C

#### 3.2.2. Oxyde développé sous air

Des observations microscopiques ont été réalisées en surface et en coupe sur les deux

oxydes sollicités aux deux températures d'essai (Fig. 8).

L'oxyde formé à 900°C et sollicité à cette même température présente une structure en aiguilles (Fig. 8.a) de tailles plus importantes que celui obtenu à 650°C (Fig.8.b). Il est plus compact mais moins adhérent au substrat. Sa dégradation est représentée principalement par des décolllements à l'interface métal-oxyde, qui se prolongent en fissurations transverses au sein de l'oxyde jusqu'à atteindre la surface externe de l'oxyde (Fig. 8.c). A 650°C, la structure de l'oxyde observée contient des boursouflures qui sont regroupées sous forme de petites sphères (Fig. 8.b). La vue en coupe montre un oxyde poreux, d'épaisseur de l'ordre de 40  $\mu\text{m}$ , adhérent au substrat. Sa dégradation à l'issue de l'essai de flexion 4 points est caractérisée par un réseau de fissurations multiples transverses et parallèles, avec un espacement entre fissures égal à environ 280  $\mu\text{m}$  (Fig. 8d).

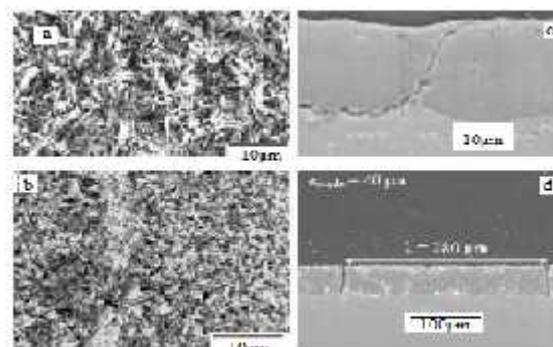


Figure 8 : Microstructure et vues en coupe des échantillons d'acier oxydés à 900°C sous air et sollicités à : (a) et (c) : 900°C ; (b) et (d) : 650°C

#### 3.2.3. Oxyde développé sous vapeur d'eau

L'atmosphère humide utilisée dans le cadre de cette étude est la vapeur d'eau qui présente un taux d'humidité relative de 21%. On obtient, après les essais de flexion, des comportements similaires à ceux obtenus sous l'air. La microstructure en surface de l'oxyde développé et sollicité à 900°C présente une structure en forme de petites sphères (Fig. 9.a). Ces particules sphériques de l'oxyde ont une taille plus importante que celles observées en surface de l'oxyde sollicité à 650°C (Fig. 9.b). Les observations faites sur des coupes montrent deux oxydes compacts et adhérent au substrat, d'épaisseurs équivalentes : à 900°C on obtient 143  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, alors qu'à 650°C on obtient un oxyde qui fait 110  $\mu\text{m}$  d'épaisseur (Fig. 9.c et Fig. 9.d). Le mode

d'endommagement de l'oxyde sollicité à 900°C est le décollement inter facial. Ce mode d'endommagement est aussi observé au sein de l'oxyde développé sous l'air et sollicité à cette même température (Fig. 8.c). Cependant, il se produit cette fois uniquement au sein même de l'oxyde, à l'interface oxyde-oxyde concernant la strate superficielle (Fig. 9.c). A basse température, le mode d'endommagement reste le même, entre l'oxyde développé sous l'air (Fig. 8.d) et celui obtenu sous la vapeur d'eau (Fig. 9.d) : il s'agit d'une fissuration multiple, transverse et parallèle. Dans ces conditions, la vapeur d'eau a provoqué l'augmentation de la distance entre fissures, qui passe de 280 µm (sous l'air) à 366 µm. On observe également le colmatage de certaines fissures comme le montre l'exemple de la figure 9.d.

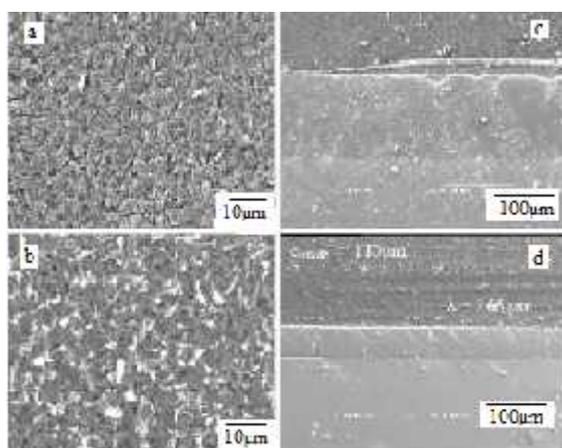


Figure 9 : Microstructure et vues en coupe des échantillons d'acier oxydés à 900°C sous la vapeur d'eau et sollicités à : (a) et (c) : à 900°C ; (b) et (d) : à 650°C.

### 3.3 Principaux résultats mécaniques

Les évolutions des contraintes mécaniques enregistrées durant les tests de flexion 4 points sous une atmosphère contrôlée en fonction de la flèche sont représentées sur les figures 10 et 11.

Ces courbes d'évolution des contraintes permettent la compréhension de l'évolution du comportement des couches d'oxydes formées à la suite des essais de flexion effectués.

A 650°C, la contrainte maximale atteinte sous l'air est relativement élevée par rapport à celle atteinte sous azote (120MPa contre 62MPa). Cependant, l'épaisseur de l'oxyde d'azote obtenu (33µm) est équivalente celle obtenue sous l'air (40µm). L'oxyde formé présente des détachements aux interfaces.

A 900 ° C, la contrainte atteinte sous l'air est faible relativement à celle obtenue sous azote (13MPa contre 35MPa). Une différence de 7MPa est enregistrée au niveau des valeurs des contraintes maximales sous azote et sous la vapeur d'eau (35MPa contre 28MPa). Les épaisseurs des couches d'oxydes formées sous la vapeur d'eau (143µm) comme sous l'air (22µm) sont plus élevées. Ce n'est pas le cas de l'oxyde formé sous azote dont l'épaisseur est faible (28µm) lequel est sujet à la fissuration. Ces paramètres sont récapitulés dans le tableau 2.

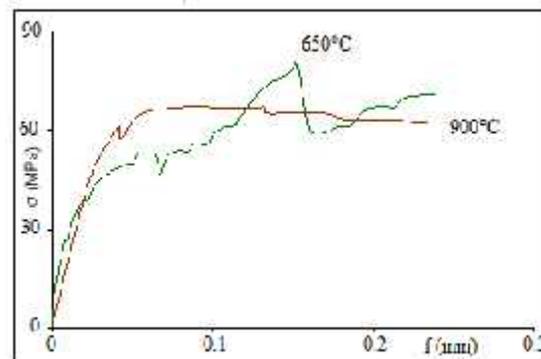


Figure 10 : Evolution de la contrainte en fonction de la flèche durant les essais de flexion effectués sous azote.

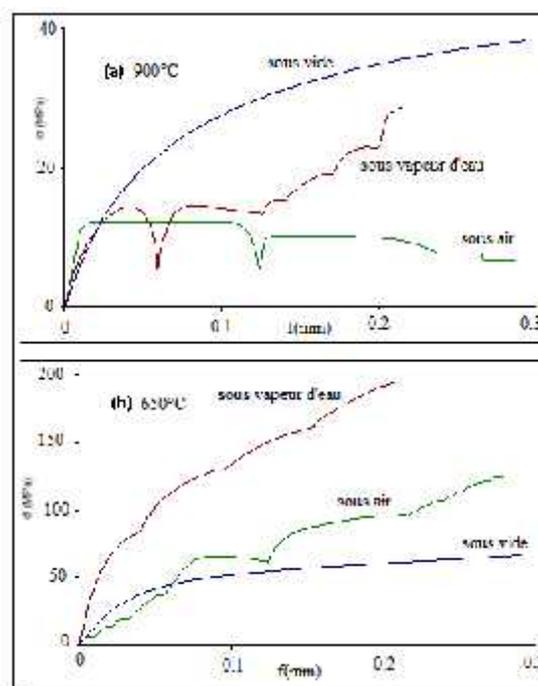


Figure 11 : Evolution de la contrainte en fonction de la flèche pour les systèmes sans et avec des oxydes formés sous l'air et la vapeur d'eau et sollicités à : (a) : 900°C, (b) : 650°C

Tableau 2. Récapitulatif des contraintes et des épaisseurs des couches d'oxydes formées.

Atmosphère	650°C	900°C
Sous vide	$\sigma_{\max} = 180\text{MPa}$	$\sigma_{\max} = 55\text{MPa}$
Sous azote	$\sigma_{\max} = 62\text{MPa}$ $e_{\text{oxide}} = 33\mu\text{m}$	$\sigma_{\max} = 35\text{MPa}$ $e_{\text{oxide}} = 28\mu\text{m}$
Sous air	$\sigma_{\max} = 120\text{MPa}$ $e_{\text{oxide}} = 40\mu\text{m}$	$\sigma_{\max} = 13\text{MPa}$ $e_{\text{oxide}} = 22\mu\text{m}$
Sous vapeur d'eau	$\sigma_{\max} = 190\text{MPa}$ $e_{\text{oxide}} = 110\mu\text{m}$	$\sigma_{\max} = 28\text{MPa}$ $e_{\text{oxide}} = 143\mu\text{m}$

Par rapport à l'épaisseur totale de l'échantillon testé en flexion à des températures différentes, égale à 1 mm ; les épaisseurs des différents oxydes représentent en moyenne 3% sous l'air comme sous l'azote avec l'augmentation de la température. Ceci n'est pas le cas de l'évolution de la contrainte par rapport à la température. Cependant sous la vapeur d'eau, l'épaisseur évolue de 11 à 14,3% avec l'augmentation de la température contrairement à l'évolution de la contrainte.

### 3.4 Discussion

L'observation des oxydes développés sous l'air et sous la vapeur d'eau, révèle que les deux principaux modes d'endommagement sont le décollement et la fissuration. La présence de ces deux types d'endommagement est fortement influencée par la température de l'essai, qui modifie de façon significative le comportement de la couche d'oxyde. En effet, il s'agit d'une couche d'oxyde constituée de trois strates, avec des températures de transition de comportement élastique-plastique comprises entre les deux températures d'essais (650°C et 900°C). Ainsi, à 900°C, la totalité de la couche d'oxyde présente un comportement plastique, alors qu'à l'inverse, à basse température, cette couche présente un comportement élastique et fragile [9].

La différence de comportement observée entre un acier sollicité directement à 650°C et un deuxième sollicité à 900°C est liée à la phase en présence. L'austénite est présente à haute température, alors qu'à 650°C, on est en présence de la ferrite et de la cémentite. Quand cet acier subit une variation thermique depuis

900°C pour ensuite être sollicité à 650°C, il présente des propriétés mécaniques supérieures à celles obtenues à 900°C. En fait, suite à ce chemin thermique, cette différence de comportement peut être liée à la transformation partielle de l'austénite, et par suite à l'austénite résiduelle présente lors de la sollicitation à 650°C après passage par 900°C [10].

### 4. CONCLUSION

Les endommagements observés sur les échantillons testés sont de deux types : des décollements à l'interface métal/oxyde ou de la strate externe d'oxyde, observés à 900°C, et des fissurations perpendiculaires à l'interface métal/oxyde, se propageant à travers l'ensemble de la couche lors des essais de flexion réalisés à 650°C.

Les couches d'oxydes obtenues sous une atmosphère humide ont un comportement plus plastique que celles obtenues sous une atmosphère sèche.

Les températures de formation de la couche d'oxyde comme l'application de sollicitation mécanique ont une influence significative sur le comportement du système étudié acier-calamine.

Lorsque les températures de formation d'oxyde et la sollicitation de flexion sont identiques, les propriétés mécaniques (limite d'élasticité, contrainte maximale) augmentent avec la température considérée. A l'opposé, si les températures de pré-oxydation et la sollicitation mécanique sont différentes, les propriétés mécaniques diminuent de façon significative.

### REFERENCES

- [1] Munther Per A., Lenard J. G., 1999, The effect of scaling on interfacial friction in hot rolling of steels *Journal of Materials Processing Technology*, (88), 105-113.
- [2] Moulin G., Arevalo P., Salleo A., 1996, Oxidation of Metals, 45, p.153
- [3]. Stevens P.G., Ivans K.P., Harper P., 1991, Increasing work-roll life by improved roll-cooling practice, *Journal of Iron Steel Inst.* 290, 1-11.
- [4] Béranger G., Huntz A.M., Pieraggi B., 1985, Rôle des contraintes en corrosion à haute température, *Editions de Physique*, 44pages, Paris, France.

[5] Schutze M., 1997, Protective oxides scales and their breakdown, *John Willey & Sons Editions*, Chichester, United Kingdom.

[6] Hancock P., 1974, Proceeding of the symposium on stress effects and oxidation of metals, *J.V Cathcart Editions USA*, AIME, 155-176.

[7] Moulin G. Makni A., Favergeon J., Lahoche L., Viennot M., Berger P., 2005, Influence of water vapour on chemical and mechanical behaviour of oxides formed on steels and iron, *Ceramics*, Vol. 92, 89-101.

[8] Makni A., 2007, Comportement mécanique et physicochimique en flexion 4 points des couches d'oxydes formées sur le fer et sur l'acier mi-dur, *thèse de Doctorat*, Génie Mécanique, U. T. Compiègne, France.

[9] Hidaka Y and all., 2003, Deformation of iron oxides upon tensile tests at 600-1250°C, *Oxidation of metals*, Vol. 59, 7-113.

[10] Zaefferer S., Ohlert J., Bleck W., 2004, A study of microstructure, transformations mechanisms and correlation between microstructure and mechanical properties of a low alloyed TRIP steel, *Acta Materialia*, Vol. 52, 2765-2778.