



## 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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



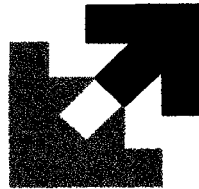
INSTITUT SUPERIEUR DE GENIE MECANIQUE ET PRODUCTIQUE

Ecole Doctorale Energie Mécanique MATériaux

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	20040385
Cote	S/r/3 04/13
Loc	

## THESE

Présentée à



L'UNIVERSITE DE METZ

Par

**Grégory VINCENT**

Pour l'obtention du grade de :

**Docteur de l'Université de Metz**

*Spécialité : Sciences de l'Ingénieur*

*Option : Sciences des Matériaux*

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



031 536080 2

**Textures, microstructures et propriétés mécaniques  
d'alliages de zinc en feuilards et en revêtements.**

**Soutenue le 17 décembre 2004 à Metz devant le jury composé de :**

Mr. P. KLIMANEK	Professeur à l'université de Freiberg, Allemagne	Rapporteur
Mr. T. WATANABE	Professeur à l'université Tohoku de Sendai, Japon	Rapporteur
Mr. C. ESLING	Professeur à l'université de Metz, France	Directeur de thèse, Examineur
Mr. M. HUMBERT	Professeur à l'université de Metz, France	Examineur
Mr. B. COLINET	Ingénieur de recherche, Société ARCELOR, Belgique	Examineur
Mr. B. GAY	Ingénieur de recherche, Société UMICORE, Belgique	Examineur

*A mes parents,  
pour l'affection qu'ils m'ont apporté.*

*A Jean Wegria<sup>†</sup>,  
pour son enthousiasme sur le zinc.*

## AVANT-PROPOS

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire d'Etude des Textures et Application aux Matériaux (LETAM CNRS UMR 7078), Unité Mixte de Recherche CNRS - Université de Metz, avec la collaboration des sociétés ARCELOR et UMICORE.

En premier lieu, je tiens à remercier Mr. Wagner, professeur et directeur du LETAM, pour m'avoir accueilli dans le laboratoire.

Je remercie Mr. Esling, professeur au LETAM et directeur de thèse, pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et pour m'avoir accordé sa confiance tout au long du déroulement de la thèse. Je le remercie également pour l'aide qu'il m'a apportée en me faisant bénéficier de ses compétences.

J'exprime une pensée émue pour Mr. Wégria qui nous a hélas quittés et qui, grâce à ses connaissances, a su me guider et m'accompagner dans les premiers pas de ces travaux. Qu'il trouve ici à titre posthume, l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je remercie Mr. Klimanek, professeur à l'université de Freiberg en Allemagne, Mr. Watanabe, professeur à l'université Tohoku de Sendai au Japon, pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'être rapporteurs de ce travail et pour leur participation au jury de thèse.

Je remercie Mr. Humbert, professeur à l'université de Metz, pour ses conseils avisés dans l'optimisation des calculs de désorientations et pour sa participation au jury de thèse. Je le remercie également pour les nombreuses critiques constructives qui m'ont permis d'améliorer le manuscrit de thèse.

J'exprime toute ma reconnaissance à tous les acteurs d'une collaboration enrichissante entre l'Université de Metz et les sociétés ARCELOR et UMICORE. Notamment j'exprime ma gratitude à Mr. Colinet et Mr. Gay qui ont accepté de participer au jury de cette thèse.

Je désire également remercier Mr. Fundenberger pour l'aide à la préparation des échantillons de traction et pour ses conseils dans le domaine du modèle de plasticité de Taylor, Mme Gey pour son aide à l'utilisation et au traitement des données de cartographies d'orientations par EBSD, Mr. Lecomte pour son aide à la programmation, Mr. Thil pour sa disponibilité aux appareillages de rayons X et tous les acteurs du LETAM qu'ils soient techniciens, assistants ingénieurs, ingénieurs, maîtres de conférence ou professeurs.

Mes remerciements vont également à mes camarades étudiants chercheurs membres du laboratoire avec qui j'ai eu le plaisir de travailler et notamment à M. Geoffroy et M. Guiavarc'h pour leurs contributions au travail d'équipe sur les aspects revêtements de zinc et modélisation.

Enfin mes sincères remerciements vont à ma famille et à Sandra, ma fiancée, pour le soutien et les encouragements qu'ils m'ont adressés pendant toute cette période.

## Sommaire

Résumé :	1
Summary :	3
<b>Chapitre 1 : Etat de l'art du zinc</b>	<b>5</b>
I. Le zinc :	5
II. Les alliages de zinc :	6
II.1 Composition :	7
II.2 Elaboration des alliages de zinc cuivre titane :	7
II.3 Solidification (microstructure, macrostructure) :	9
II.4 Propriétés (texture) :	11
III. La galvanisation :	12
III.1 Les utilisations des galvanisés :	13
III.2 Principe de la galvanisation	14
III.3 Chimie du bain, Phases intermétalliques	15
III.4 Microstructures - Taille des domaines :	19
III.5 Texture :	20
IV. Mécanismes de déformation du zinc :	20
IV.1 Modes de glissement :	20
IV.2 Maclage :	22
IV.3 Cission critique :	23
IV.4 Influence des joints de grains	24
IV.5 Fissuration :	25
V. Evolution des textures, microstructures, fissurations à la déformation du zinc galvanisé :	26
V.1 Relation Texture Fissuration dans l'essai de traction	27
V.2 Relation Texture Fissuration dans l'essai Marciniak:	30
VI. Influence du laminage et du skin-pass :	34
VI.1 Effets métallurgiques du skin-pass :	34
VI.2 Effets métallurgiques du laminage sur le ZnCuTi :	36
VII. Modélisation du laminage :	36
VII.1 Différents modèles de laminage de matériaux homogènes	36
VII.2 Adaptation de la méthode des lignes de courant au skin-pass des aciers galvanisés.	39
VII.3 Cas du laminage asymétrique :	43
VIII. Modélisation de Taylor :	43
IX. Propriétés des joints de grains :	44
IX.1 Joints de grains aléatoires	45
IX.2 Joints CSL :	45
IX.3 Résistance à la fissuration :	47
<b>Références Bibliographiques :</b>	<b>49</b>
<b>Chapitre 2 : Modélisation des déformations et contraintes lors du skin-pass industriel d'une tôle galvanisée</b>	<b>54</b>
Introduction	54

## Sommaire

---

<b>Modeling of the strains and stresses during the industrial skin-pass of a galvanized steel sheet</b>	<b>55</b>
SIMULATING THE TEMPER ROLLING OF GALVANIZED STEEL	56
<b>Chapitre 3 : Evolution de texture au laminage asymétrique</b>	<b>62</b>
Introduction	62
<b>Texture evolution during asymmetrical rolling</b>	<b>63</b>
I. Evolution de texture après laminage asymétrique du ZnCuTi	64
II. Evolution de texture après laminage asymétrique d'une tôle galvanisé	72
<b>Chapitre 4 : Etude des joints de grains</b>	<b>81</b>
Introduction	81
<b>Study of the Grain boundaries.</b>	<b>82</b>
I. Les CSL dans un revêtement de zinc	83
II. Influence d'un champs magnétique sur la formation de CSL dans un acier	100
<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>110</b>
<b>Conclusions and prospects</b>	<b>114</b>
<b>Annexes</b>	<b>117</b>
SIMULATION DYNAMIQUE MOLÉCULAIRE DE JOINTS DE GRAINS DANS LE RÉSEAU HÉXAGONAL COMPACT DU ZINC	117
REPRESENTATION DES ORIENTATIONS	126
A1. Mesure et exploitation des figures de pôles.	126
A2. Méthodes de mesure :	128
A3. Calcul de la Fonction de Densité des Orientations.	131
A4. Représentation des fonctions densité des orientations	134
<b>Références Bibliographiques :</b>	<b>136</b>

### Résumé :

Les alliages de zinc (Zinc-Cuivre-Titane) sont utilisés sous forme de feuillards massifs dans l'industrie du bâtiment. Les alliages de zinc faiblement alliés (Fe, Al, Pb ...selon alliage) sont employés pour réaliser les revêtements de faible épaisseur de tôles galvanisées utilisées notamment dans l'industrie automobile.

L'étude des propriétés physico-chimiques et mécaniques de ces matériaux est basée sur des études microstructurales, notamment de texture cristallographique et de caractéristique des joints de grains. La texture cristallographique d'un matériau est la statistique des orientations des grains qui le constituent. Une meilleure compréhension du comportement des matériaux polycristallins requiert à la fois des informations locales (orientations individuelles déterminées en EBSD) et des caractéristiques statistiques globales telles que la fonction de densité des orientations (FDO), la fonction de densité des désorientations de grains (FDDG), la distribution des joints de grains, etc... L'ensemble de ces caractéristiques peut être déterminé par des mesures d'orientations individuelles en diffraction de rayon X ou en diffraction d'électrons en microscopie électronique à balayage EBSD (Electron Back Scattering Diffraction).

Au travers d'échantillons différents, les études microstructurales ont pu être réalisées sur des échantillons préparés par divers procédés et soumis à des sollicitations variées. Les diverses déformations réalisées en laboratoire (essai de traction, essai Marciniak) ont été comparées entre elles et les déformations réalisées dans les sites ou laboratoires industriels (laminage, skin-pass, symétrique ou asymétrique) ont pu être étudiées par des modèles de simulation numérique. Les modèles utilisés sont d'une part celui des lignes de courant adapté au skin-pass avec l'aide de C. Counhaye et d'autre part le modèle de plasticité polycristalline de Taylor qui prédit l'évolution des textures en fonction des déformations subies par l'échantillon.

Ce travail étudie l'influence du skin-pass sur la résistance à la fissuration des revêtements de zinc et les états de déformation et de contrainte locaux obtenus dans la tôle et dans le revêtement de zinc lors du skin-pass au moyen du modèle des lignes de courant adapté aux aciers revêtus de zinc. L'influence des paramètres du procédé de laminage sur les déformations et les contraintes locales est alors calculé numériquement et représenté graphiquement.

En vue d'améliorer encore la résistance à la fissuration, un nouveau type de laminage est exploré pour le zinc massif et les tôles revêtues de zinc. Il s'agit du laminage asymétrique et du skin-pass asymétrique. Ce type de laminage change nettement la texture du ZnCuTi alors que dans le cas du revêtement de galvanisation la texture est peu modifiée. Ceci s'explique par le fait que le taux de réduction est important dans le laminage (de l'ordre de 50 pour cent) alors qu'il est faible dans le skin-pass (de l'ordre de 2 pour cent). Dans cette partie les résultats obtenus par l'utilisation simultanée du modèle de Taylor pour la prédiction des textures, associé au modèle de ligne de courant, sont comparés aux résultats expérimentaux. Le suivi de l'évolution de texture au cours de la déformation permet de valider *a posteriori* les diverses hypothèses avancées dans les modèles de plasticité.

Dans la dernière partie, l'étude des caractéristiques des joints de grains, notamment les désorientations à travers le joint, complète la description des mécanismes mis en jeu lors de la déformation plastique et de la fissuration, de façon à préciser le rôle de la texture (orientation des grains déterminant la fissuration intragranulaire ou clivage) et des caractéristiques des joints de grains (désorientations déterminant la fissuration intergranulaire). Cette étude est réalisée dans le revêtement de zinc afin de corrélérer la fissuration avec les orientations et désorientations de grains. Elle est également faite dans le substrat d'acier pour étudier l'influence bénéfique de traitements thermomécaniques sous champs magnétique intense pour améliorer les caractéristiques du substrat et ouvrir des perspectives d'améliorer également les caractéristiques du revêtement par les mêmes techniques en recourant à des champs magnétiques encore plus intenses en raison du diamagnétisme du zinc, opposé au ferromagnétisme du substrat d'acier.



### **Summary :**

The zinc alloys (Zinc-Copper-Titanium) are used in the shape of bulk zinc sheet in the building industry. The low alloyed zinc alloys (Fe, Al, Pb, ... according to the grades) are used to carry out the low thickness coating of galvanized sheets, in particular those designated to the car industry. The study of the physicochemical and mechanical properties of these materials is based on microstructural studies, in particular that of crystallographic texture and grain boundaries characteristics. The texture of a material is the orientation statistics of the constituting grains. A better understanding of polycrystalline material behaviour requires both local information (individual orientations determined by EBSD, Electronic Back Scattered Diffraction) and global statistics such as the orientation density function (ODF), the misorientation density function (MODF) of grains, the distribution of the grain boundaries, etc.... All these characteristics can be determined by individual orientation measurements by x-ray diffraction or more commonly by electron diffraction in the scanning electron microscope (EBSD).

Through many samples, microstructural investigations could be done on samples prepared by various techniques and be subjected to various tests. The diverse tests performed in laboratory (tensile test, Marciniak test) were compared to each other and tests made in the industrial sites or laboratories (symmetric respectively asymmetric rolling and skin-pass rolling,) could be studied by numerical simulation models. The models used are on the one hand the flow line model, adapted with the assistance of C. Counhaye to the skin-pass rolling and on the other hand Taylor-type polycrystalline plasticity models which predict the texture evolutions according to the deformations undergone by the sample.

The present work studies the influence of the skin-pass rolling on the cracking resistance of the zinc coatings and the local deformation and stress states obtained in the sheet and in the zinc coating by a flow line model adapted to zinc-coated steel. The influence of the rolling parameters on the local strains and stresses is numerically calculated and graphically represented.

In order to further improve the cracking resistance, a new rolling process is explored for bulk zinc sheets and galvanized zinc sheets. It deals with asymmetrical rolling and asymmetrical skin-pass rolling. This type of rolling clearly changes dramatically the texture of ZnCuTi whereas in the case of galvanized coating the texture is modified to a slight extent only. This is explained by the fact that the reduction ratio is large in rolling (ranging about 50%) whereas it is small in the skin-pass rolling (ranging about 2%). In this part results obtained by the simultaneous use of the Taylor model for the prediction of textures, associated to the flow line model, are compared to the experimental results. The follow-up of the texture evolution during the deformation makes it possible to validate a posteriori the various assumptions made in the models of plasticity.

In the last part, the study of the grain boundaries characteristics, in particular the misorientation through the grain boundary, completes the study of the mechanisms involved in the plastic deformation and cracking, in order to specify the role of the texture (intragranular cracking or cleavage are determined by grains orientation) and the grain boundaries characteristics

(misorientation across grain boundary determining intergranular cracking). This study is carried out on zinc coatings in order to correlate cracking behaviors to the orientations and misorientations of grains. It is also performed on steel substrates to study the beneficial influence of thermomechanical treatments under high magnetic fields, in view of improving the characteristics of the substrate and the coating by the same techniques. These magnetic fields will be even more intense because of the diamagnetism of the zinc, opposed to the ferromagnetism of the steel substrate.

## Chapitre 1 : Etat de l’art du zinc

### I. Le zinc:

L'utilisation significative du zinc s'est faite bien avant qu'il ne soit reconnu comme un métal au 14<sup>ième</sup> siècle. Le zinc était déjà présent dans les minerais extraits par les Romains (200 avant JC) ou par les Grecs (384 à 322 avant JC) [Porter, Zinc Handbook]. Les principaux métaux produits dans l'Antiquité gréco-romaine sont l'argent, le plomb, le fer, le cuivre, l'étain et l'or. Parmi les minerais correspondants, les plus recherchés ont été la galène (sulfure de plomb) argentifère, les oxydes de fer (limonite, goëthite), les oxydés de cuivre des parties hautes des filons et, parmi les sulfures, principalement la chalcopryrite, la cassitérite (bioxyde d'étain), les sulfures aurifères. Bien entendu, les métaux natifs n'étaient pas ignorés: le cuivre, l'or et, plus rare, l'argent. Dans les filons de plomb-argent, la galène est très fréquemment accompagnée du minerai de zinc courant, la blende (ou sphalérite, sulfure de zinc). Mais les Anciens, qui ne connaissaient pas le zinc métal, ont négligé la blende. Cependant, sous l'Empire, les Romains ont utilisé la calamine (carbonate de zinc) pour cémenter le cuivre, afin d'obtenir l'orichalque (ou laiton) dont ils ont frappé des monnaies (sesterces) [Encyclopaedia Universalis, 1989].

Les premières expériences de fonte et d'extraction ont été réalisées en Chine et en Inde (1000 après JC). Toutefois, la connaissance moderne du zinc est attribuée au chimiste allemand du XVIII<sup>ème</sup> siècle : Andreas Marggraf, qui lui donna notamment son nom. Le premier procédé industriel fut inventé par le chimiste liégeois l'abbé Daniel Dony, à qui Napoléon 1<sup>er</sup> avait concédé la mine de Moresnet (dans la région de Namur), à charge pour lui de rechercher le moyen d'en extraire le minerai. La première usine de fusion de zinc à grande échelle dans le monde occidental a été construite à Bristol, en Angleterre, en 1743.

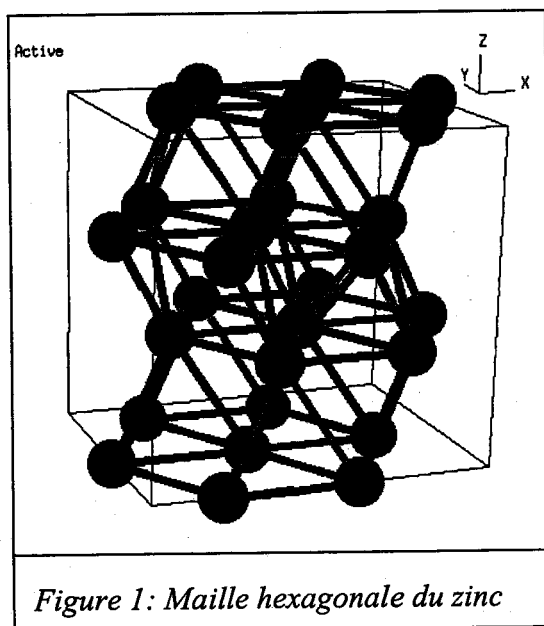
Le zinc est particulièrement apprécié dans différents secteurs où ses caractéristiques tant chimiques que physiques lui permettront d'être associé à de nombreuses applications. Il bénéficie d'une réputation de "métal écologique".

Le zinc n'est pas considéré comme toxique. Toutefois, lorsque de l'oxyde de zinc à peine formé est inhalé, des désordres physiologiques peuvent être observés. De ce fait, le taux maximum d'oxyde de zinc recommandé est de 5mg par m<sup>3</sup> d'air dans les lieux de son traitement.

Le zinc est un métal argenté bleu-gris avec un point de fusion relativement bas de 419.5 °C. Sa résistance mécanique et sa dureté sont plus importantes que l'étain ou le plomb mais nettement moins importantes que l'aluminium ou le cuivre. Le zinc est fragile à température ambiante et devient malléable aux alentours de 100°C.

Quelques données physiques :

Numéro atomique : 30  
 Masse molaire atomique : 65,39 g  
 Volume molaire : 9,16 cm<sup>3</sup>/mol  
 Densité : 7.14  
 Température de fusion : 692 K (ou 419 °C)  
 Vitesse de propagation sonore : 3700 m/s  
 Module d'Young : 108 GPa  
 Module de rigidité : 43 GPa  
 Coefficient de Poisson : 0.25  
 Résistivité électrique : 5.9 10<sup>-8</sup> Ω m  
 Réflectivité : 80%



Le zinc cristallise dans le système hexagonal compact (HCP). La maille est construite sur les axes  $a=0,2659$  nm et  $c=0.4936$  nm (Fig. 1). Le rapport  $c/a$ , qui influence le comportement plastique du zinc est donc de 1,856. Ceci est supérieur au rapport de la structure à compacité idéale qui est de

$$\sqrt{\frac{8}{3}} = 1.633. \text{ Les angles dans la maille sont } \alpha=\beta=90^\circ, \gamma=120^\circ. \text{ Le groupe spatial du zinc est :}$$

$P6_3/mmc$ .

Le zinc, de structure cristalline HCP, présente une grande anisotropie dans ses propriétés physiques (propriétés mécaniques, conductivité thermique etc.).

L'une des propriétés les plus intéressantes du zinc est son potentiel électrochimique ( $E^\circ = -0.76$  V) qui est inférieur à celui du fer ( $E^\circ = -0.45$  V). Quand il est au contact avec de l'acier, il a donc tendance à s'oxyder plus facilement que le fer et en se corrodant il forme des oxydes (ZnO) ou des hydrates (Zn(OH<sub>2</sub>)) très stables qui protègent l'acier même si localement le revêtement est endommagé, par exemple par une griffure.

**II. Les alliages de zinc :**

Le métal pur n'est pas utilisé dans les applications qui demandent de fortes contraintes à cause de sa faible résistance mécanique à la fracture. C'est pour cette raison que la plupart de ses utilisations sont réalisées avec des alliages de zinc. Ces alliages sont alors constitués de métaux d'ajout qui viennent renforcer les propriétés mécaniques du zinc [Diot (1999)]. Notamment l'ajout de cuivre et de titane augmente la résistance des matériaux laminés et contribue ainsi au développement d'un produit industriel de première importance pour les toitures et le bâtiment. Lorsqu'il est utilisé pour les toitures ou le bâtiment, l'alliage doit posséder une bonne aptitude au pliage à des températures les plus basses possibles.

## II.1 Composition :

L'industrie utilise le zinc sous bien d'autres formes dont voici quelques exemples non exhaustifs :

- Les alliages au Plomb-Cadmium : ils sont utilisés pour la fabrication de godets de piles salines réalisées par filage inverse, par chocs ou par emboutissage.
- Les alliages à l'aluminium : ils sont utilisés pour leur propriété de superplasticité, ils sont mis en œuvre par thermoformage.
- Les alliages au Cuivre-titane : ils trouvent leur principale utilisation sous forme de laminés dans le bâtiment de par leur excellente résistance au fluage.

C'est à cette dernière catégorie d'alliages que nous nous intéresserons dorénavant.

## II.2 Elaboration des alliages de zinc cuivre titane :

Vers les années 1964, 1965, l'évolution économique (productivité, reproductibilité de la qualité, conditions de travail) a poussé l'industrie du zinc à abandonner la coulée en plaques et le laminage par paquets pour passer à la coulée continue et au laminage en bandes larges type « hazelett » (Fig. 2). Cette machine est constituée de 2 feuilards d'acier doux montés sur 2 châssis superposés qui forment le moule de coulée et permettent le déplacement du métal en cours de solidification. Ce procédé est applicable à la coulée en 16 mm d'épaisseur (Usine d'Auby) et donne une structure de coulée à grains fins grâce à une grande vitesse de solidification. Les phénomènes de ségrégation sont minimisés par rapport à la coulée en lingotière et le produit obtenu est plus facile à déformer au cours de la première transformation. L'état de surface est correct et la mise au mille des rives devient insignifiante. D'autre part, la faible épaisseur du produit coulé permet une diminution du prix de revient du laminage (installation qui lui est généralement couplée).

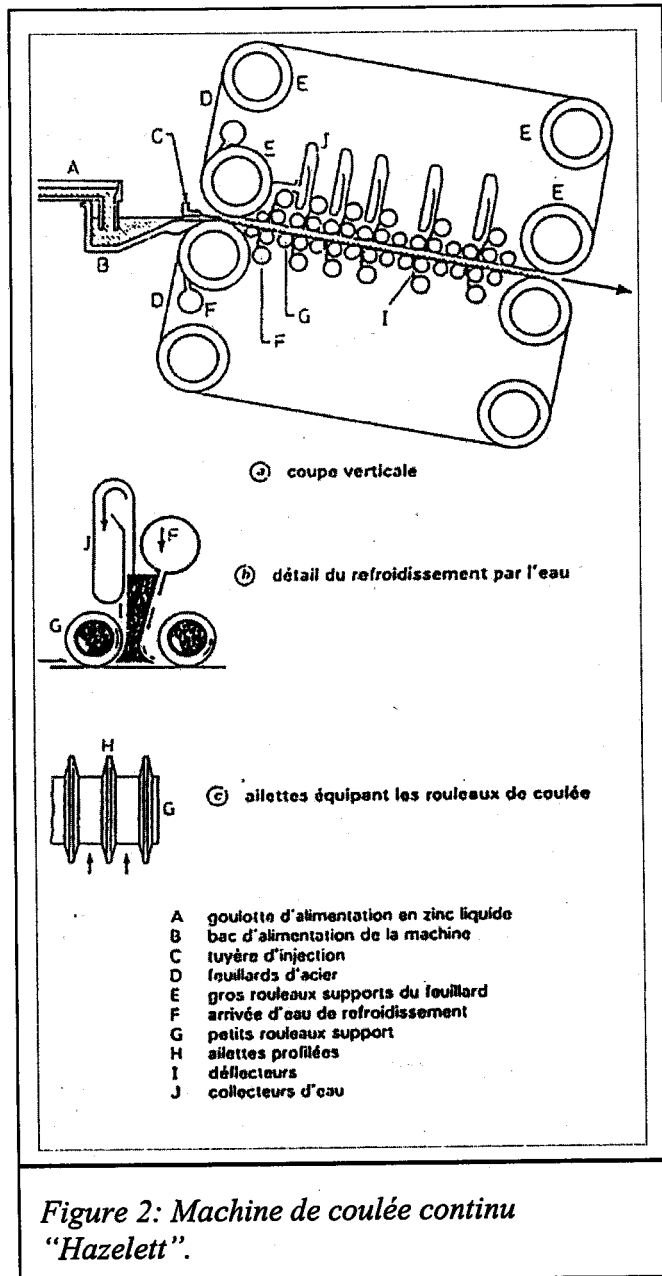


Figure 2: Machine de coulée continu "Hazelett".

### II.3 Solidification (microstructure, macrostructure) :

Dans le cas du lingot, les travaux de Wégria (1984), montrent que la structure de solidification évolue du type basaltique au type équiaxes quand la teneur en éléments d'alliage augmente. Cette évolution est accompagnée d'un affinement du grain.

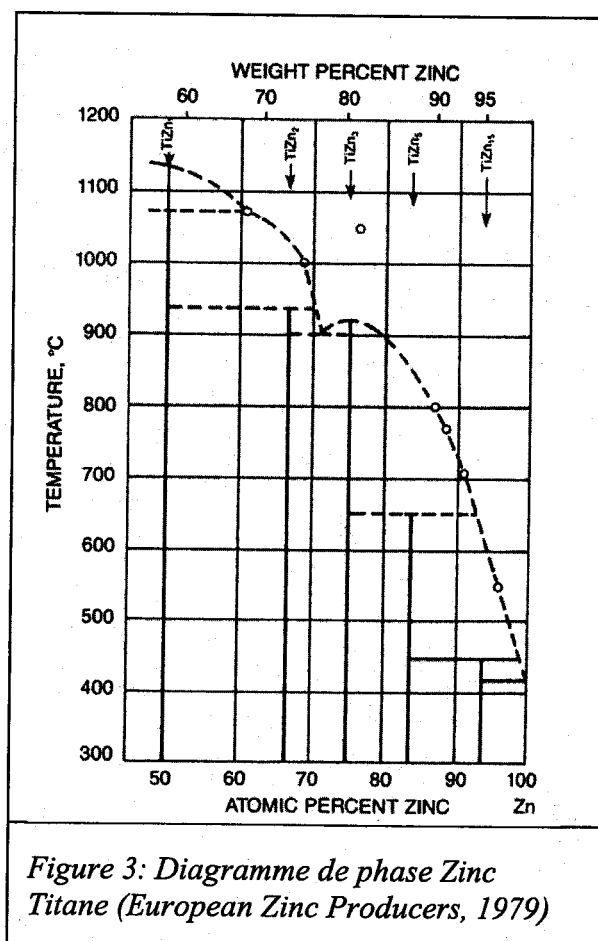
Etudions séparément les deux éléments d'alliage que sont le titane et le cuivre dans le zinc.

Le titane a sa solubilité maximale dans le zinc solide (Fig. 3) pour un rapport de 0.02% à 400°C [Gebhardt (1941)]. A l'eutectique (418°C) les teneurs en titane sont très variables : 0.12% Ti d'après Anderson et al. (1944) ; 0.23% Ti d'après Heine et Zwicker (1962) ; 0.45 % Ti d'après Rennhack et Conard (1966). En réalité ces valeurs varient en fonction de la vitesse de solidification. Plus la vitesse est grande, moins le nombre de germes est important et plus la concentration en titane augmente [Wegria (1985)]. Lors de la solidification, la création d'un précipité  $TiZn_{15}$ , qui s'aligne en filets dans la direction de laminage, limite la croissance des grains en largeur. L'amélioration des propriétés mécaniques des alliages de ZnCuTi est donnée par la répartition et par la morphologie de ces précipités. L'addition de titane dans le zinc augmente sa résistance au fluage [Cosse et al. (1977)].

La solubilité maximale du cuivre dans le zinc (Fig. 4) est de 2.7% à 424°C. Cette solubilité diminue avec la température et se traduit par la précipitation d'une phase  $\epsilon$ . Pour une teneur en cuivre inférieure à 0.8%, la seule phase en présence est du zinc contenant du cuivre en solution solide de substitution. Cette dernière phase augmente la température de recristallisation de l'alliage et permet ainsi d'obtenir un produit à grains fins après première transformation.

L'ajout de titane et de cuivre dans le zinc permet une augmentation de la résistance à la traction et une diminution de la déformation à rupture.

Les structures de coulée des alliages de zinc sont comme leurs compositions, des facteurs déterminants quant aux propriétés futures des tôles laminées.



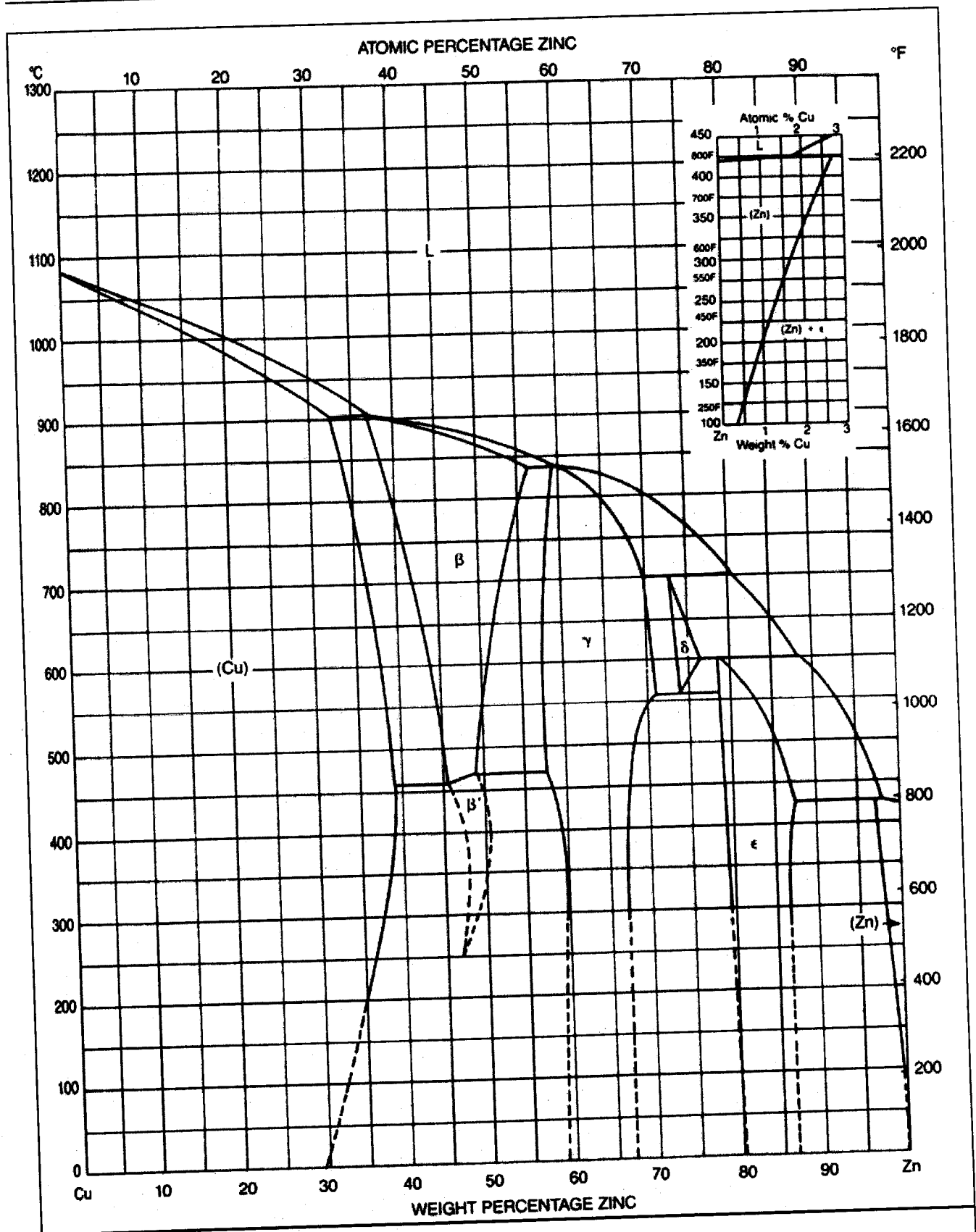


Figure 4: Diagramme de phase Zinc – Cuivre (European Zinc Producers, 1979)



Les conditions de solidification ont une grande influence sur les structures de coulée. Wégria (1984) a été amené à distinguer 3 zones dans le lingot :

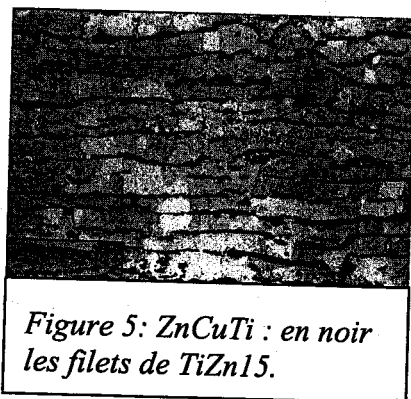
- en peau, une structure à grains fins, de faible dimension, générée par le refroidissement brutal du liquide de coulée au contact des feuillards.
- Une structure à grains allongés, ou structure basaltique générée par le déplacement continu du front de solidification de la peau vers le cœur du lingot. Elle est formée d'un réseau de petits grains allongés dans le sens du flux de chaleur et séparés par une mince couche d'eutectique Zn-TiZn15. C'est une structure de type cellulaire et la fraction volumique d'eutectique croît avec le taux de titane.
- A cœur, une structure à grains équiaxes, formés par croissance de grains solides au sein du liquide. Elle est constituée de gros grains polyédriques séparés par un dépôt eutectique dont l'importance varie avec le taux de titane. Pour un fort taux de titane la forme du grain devient arrondie.

Wégria (1984) formule les conclusions suivantes :

- l'augmentation de la teneur en titane entraîne une augmentation de la zone équiaxes au détriment de la zone basaltique, et un affinement général du grain.
- Le cuivre conduit à un léger affinement du grain pour les alliages à fort taux de cuivre.

L'amélioration de l'aptitude au pliage des alliages de zinc cuivre titane a également fait l'objet d'une étude par Beaujean (1993). Son travail consistait à étudier sur laminoir pilote, une gamme d'alliages de même composition en cuivre (1750 ppm) et en titane (750 ppm) mais se différenciant par leur composition en magnésium. Beaujean montre que les caractéristiques mécaniques de ces alliages n'évoluent pas de manière croissante avec le taux de magnésium. La plage, pour laquelle il y a augmentation des caractéristiques mécaniques se situe entre 5 et 10 ppm. L'augmentation du taux de magnésium favorise une meilleure répartition des filets de TiZn15 (Fig. 5), ceux-ci semblent plus rectilignes, ininterrompus et moins groupés en amas.

En effet le magnésium joue un rôle d'affineur de grain, il augmente la température de recristallisation et diminue le taux de recristallisation des alliages [Dreulle (1983)].



### II.4 Propriétés (texture) :

La texture est largement influencée par les conditions d'élaboration mais aussi par les éléments d'addition. L'étude menée par Galledou (1992) sur deux alliages de zinc cuivre titane élaborés dans des conditions différentes (température de laminage de dernière passe différente) montre

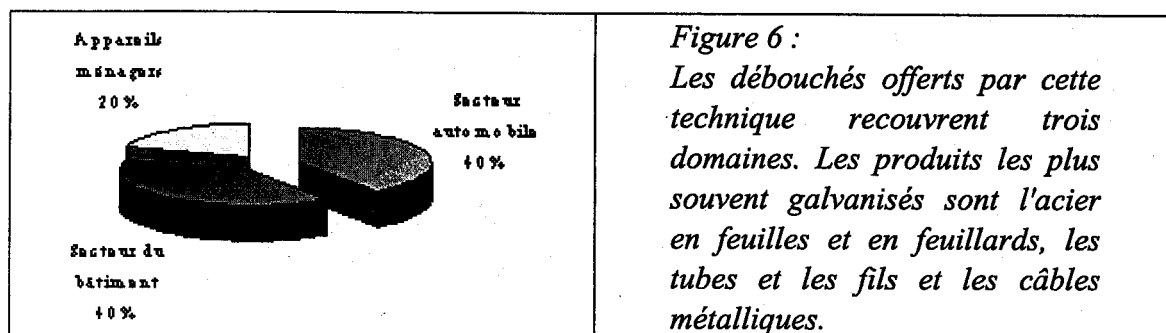
une différence de texture. Les figures de pôles (00.2) de l'échantillon de laminage à température la plus élevée donnent une texture de recristallisation alors que l'échantillon laminé à faible température présente une texture de type laminage à froid. Dans les deux cas les axes c sont répartis de part et d'autre du centre de la figure de pôles à 20° de DN. Pour la texture de recristallisation les axes c sont très étalés alors que pour la texture de laminage à froid ces axes présentent une intensité élevée dans la direction DL. Galledou (1992) montre un meilleur comportement au pliage pour des intensités d'axes c très marquées. Cependant cette étude montre également, après des essais de laminage sur des tôles recristallisées, que le comportement au pliage dépend de l'obtention d'une texture intermédiaire entre une texture de recristallisation complète et une texture de laminage à froid. Les conditions d'élaboration ont donc une importance non négligeable sur la texture et sur les différentes propriétés qui en découlent directement. [Piccinin et al. (1975) (1976), Wegria et al. (1979), Messien et Wegria (1981), Wegria et Piccinin (1981), Wegria (1984), Philippe et al. (1994a) Philippe et al. (1994b)].

Le Magnésium joue lui aussi un rôle dans le type de texture obtenu en fonction du taux introduit. Beaujean montre que lorsque le taux de magnésium est élevé, moins l'alliage est recristallisé et plus la composante de laminage à froid est importante (la densité d'axes c à 20° de DN dans le plan DL-DN diminue alors qu'elle augmente dans la direction DL). Une étude des désorientations aux joints de grains a également été faite. Elle met en évidence que plus le taux de magnésium augmente plus la désorientation entre grains diminue.

Le travail de Diot (1998) présente également un travail sur des alliages de Zinc Cuivre Titane Magnésium Aluminium mais élaborés dans les conditions du procédé industriel. Il en résulte un gradient de texture qui influence les propriétés mécaniques du matériau. De plus le magnésium et l'aluminium contenus dans l'alliage contribuent à l'amélioration de la pliability à froid.

### **III. La galvanisation :**

La galvanisation est un procédé de revêtement des métaux ferreux qui se fait soit par immersion des pièces dans un bain de zinc fondu, soit par électrolyse. La galvanisation a notamment pour principal objectif de pallier aux conséquences négatives que peuvent avoir l'air ou l'eau sur l'acier, c'est à dire la corrosion. Cette activité représente 48% de la consommation de zinc dans le monde (Fig. 6). En dehors de la protection contre la corrosion, le procédé de la galvanisation possède également comme avantage de permettre une réduction considérable des coûts. La corrosion de l'acier et donc son remplacement entraînerait un coût supplémentaire équivalent de 2,5 à 4% du PNB pour un pays comme la France.



*Figure 6 :  
Les débouchés offerts par cette technique recouvrent trois domaines. Les produits les plus souvent galvanisés sont l'acier en feuilles et en feuillards, les tubes et les fils et les câbles métalliques.*

### III.1 Les utilisations des galvanisés :

#### III.1.1 Le bâtiment :

Les pièces fabriquées en zinc et en particulier les tôles galvanisées sont utilisées en architecture dans la construction de charpentes ou de façades. Ce matériau a une durée de vie de plus de cinquante ans. Il entre dans la fabrication par exemple des *goujons*, qui représentent des éléments importants de la structure. En effet, ces pièces cylindriques, dont les extrémités sont taraudées permettent de relier deux éléments de toiture entre eux.

#### III.1.2 L'automobile :

Ce secteur représente 40% environ du marché des pièces galvanisées. Aujourd'hui, environ neuf voitures sur dix en circulation contiennent une ou plusieurs pièces galvanisées, ce qui représente en moyenne 15 kg de zinc par véhicule.

De par leurs caractéristiques intrinsèques, les batteries en zinc sont plus performantes que les autres systèmes actuels. Ceci pourrait avoir une influence notamment sur le secteur des voitures électriques. Des représentants de cette l'industrie tablent sur une croissance du marché à dix ans, de l'ordre de 5 à 10%.

#### III.1.3 L'appareillage domestique :

Le zinc est dans ce domaine, notamment intégré dans les appareils "ménagers", tels que les réfrigérateurs, ou les lave-vaisselle. Toutefois, la principale innovation revient au secteur informatique.

L'emploi du zinc dans le domaine informatique se fait surtout à travers l'emploi de nouveaux types de piles qui ont progressivement remplacé les piles à mercure : les batteries "zinc-air", qui permettent non seulement d'améliorer les capacités d'autonomie des appareils dans lesquels elles sont intégrées, mais qui sont également plus respectueuses de l'environnement que leurs aînées. Les piles à base de zinc ont notamment l'avantage d'être recyclables sans fin et sans perdre ni leurs qualités chimiques, ni leurs qualités physiques. Le zinc représente une source d'énergie propre et durable pour les années à venir. Cependant, l'impact que pourrait avoir le zinc sur l'environnement n'est pas totalement connu à ce jour et certaines études sur le sujet sont en cours.

Leurs résultats auront sans nul doute des conséquences sur le secteur des aciers galvanisés destinés à la construction et qui représente à l'heure actuelle près de la moitié des débouchés. A ce jour, on estime qu'un tiers environ du zinc consommé a été produit à partir du recyclage du zinc usagé.

### III.2 Principe de la galvanisation

La tôle d’acier galvanisée est un produit plat en acier non allié ou faiblement allié, laminé à chaud (LAC,  $e > 2.5$  mm) ou à froid (LAF,  $e < 2.5$  mm), recouvert d’une couche de zinc par immersion dans un bain de zinc en fusion (température d’environ  $450^\circ$ ). Avant le passage dans le bain de zinc cette tôle d’acier doit être préparée afin de recevoir le mieux possible la couche de zinc. Elle est donc nettoyée (dégraissée et décalaminée) et chauffée en continu (four à réduction, four à atmosphère contrôlée ou une combinaison des deux). La masse surfacique de revêtement déposé est comprise entre 100 et 350  $g/m^2$  sur les deux faces. Le contrôle de l’épaisseur déposée est réalisé à l’aide de couteaux d’air ou d’azote (Fig. 8b) directement à la sortie du bain. Le refroidissement de la tôle s’effectue ensuite dans une tour de refroidissement avant d’être conditionnée soit en rouleau pour les bandes soit en tôles empilées sur palettes.

Pour certaines applications, telle que l’automobile, un skin-pass est effectué avant le conditionnement. Le skin-pass (Fig. 7) consiste en un laminage à froid ( $T < 50^\circ C$ ) de l’acier revêtu avec un taux de réduction compris entre 0.5 et 2%.

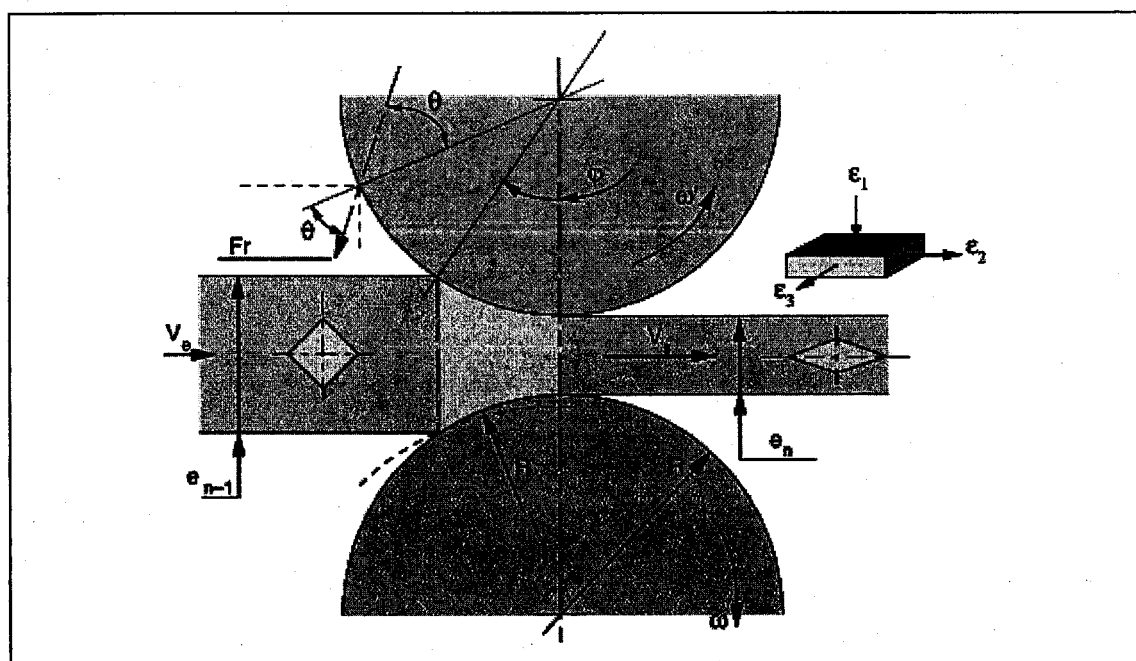


Figure 7 : Schéma du laminage qui représente aussi celui du skin-pass dans le cas particulier d’une finition à faible taux de réduction [Le Bon, 1994]

A l’origine le skin-pass présente plusieurs intérêts :

- planage de la tôle
- suppression du palier de la courbe de traction (correspondant à la propagation des bandes de Lüders) afin d’éviter la formation de vermiculures.
- impression d’une rugosité pour permettre l’adhérence des laques et peintures déposées ultérieurement.

### III.3 Chimie du bain, Phases intermétalliques

Une couche intermétallique, contenant plusieurs phases, se forme entre le substrat en acier et le revêtement de zinc pendant le procédé de galvanisation à chaud [Marder (2000)]. L’épaisseur des phases intermétalliques dépend de la diffusion du fer dans la couche de zinc et vice-versa et est fonction de la composition du substrat, de la température du bain, du temps d’immersion ainsi que des éléments d’addition. Les phases intermétalliques influencent la liaison entre l’acier et le zinc et le comportement lors de la déformation. L’adhérence diminue avec l’augmentation de l’épaisseur des phases intermétalliques.

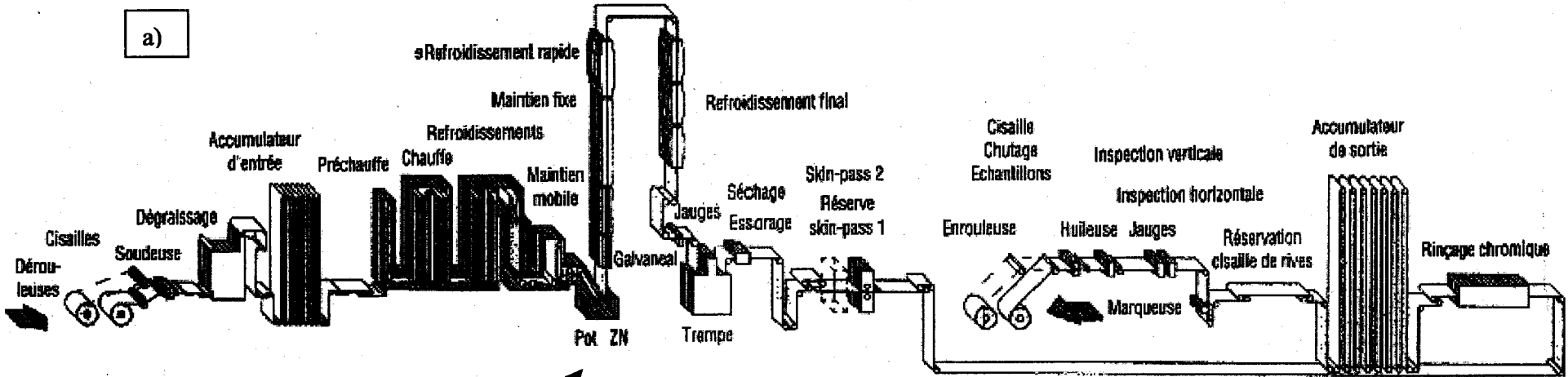
#### III.3.1 Revêtement avec du zinc pur

A 450°C, la diffusion du zinc dans le fer est négligeable tandis que le fer se dissout et diffuse facilement dans le zinc fondu [Culcasi et al. (1999)].

Le diagramme de phase Fe-Zn (Fig. 9) indique les phases qui peuvent se former. D’après ce diagramme, les phases intermétalliques se succèdent dans le revêtement solide dans l’ordre indiqué au tableau 1.

Phase	Formule	Structure cristalline
$\eta$	Zn(Fe)	HC
$\zeta$	FeZn <sub>13</sub>	monoclinique
$\delta$	FeZn <sub>7</sub>	hexagonale
$\Gamma_1/\delta_1$	FeZn <sub>4</sub>	CFC
$\Gamma$	Fe <sub>3</sub> Zn <sub>10</sub>	CC
$\alpha$	Fe(Zn)	CC

Tableau 1 : Intermétalliques présents après galvanisation dans un bain de zinc.



1. Four de recuit
2. Bain de zinc (env. 470°C)
3. Rouleau étaleur
4. Lames d'air
5. Bande
6. Four "galvannealed"

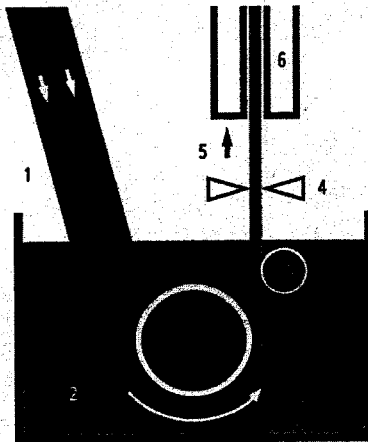


Figure 8 : a) Ligne de Galvanisation ; b) Grandissement du pot de zinc fondu avec en (1) la zone d'entrée de la tôle et en (4) les couteaux d'air ou d'azote pour le réglage de l'épaisseur finale de zinc sur la tôle.

Crédits : COCKERILL-SAMBRE

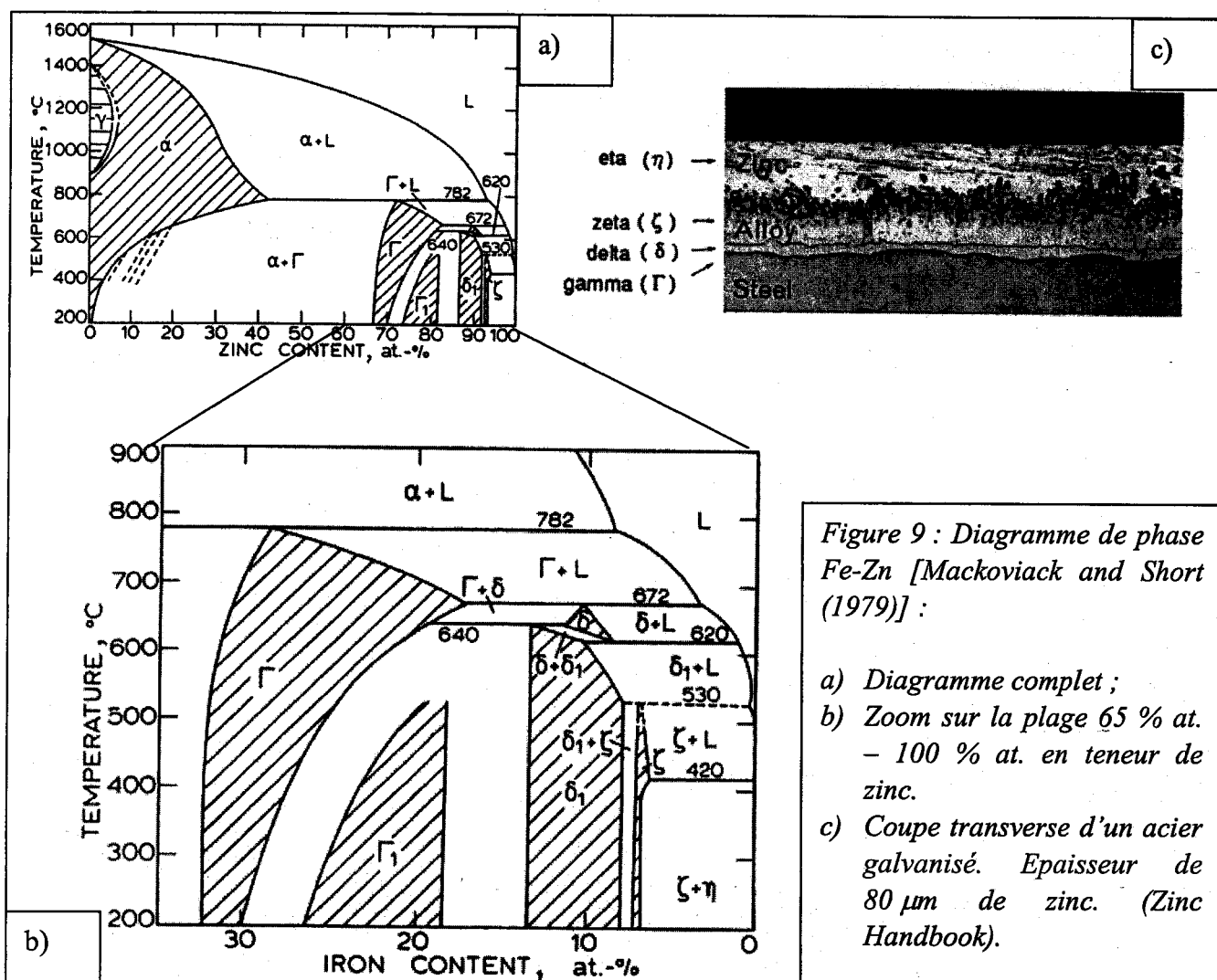


Figure 9 : Diagramme de phase Fe-Zn [Mackoviack and Short (1979)] :

- a) Diagramme complet ;
- b) Zoom sur la plage 65 % at. – 100 % at. en teneur de zinc.
- c) Coupe transverse d'un acier galvanisé. Epaisseur de 80  $\mu\text{m}$  de zinc. (Zinc Handbook).

### III.3.2 Revêtement avec des alliages zinc - aluminium

L'aluminium permet d'éviter la création de phases intermétalliques Zn-Fe assez fragiles lors de la solidification de la couche de zinc sur le substrat. Il permet de créer des phases intermétallique à base d'alliages ternaires Zn-Fe-Al (Fig. 11) et de diminuer l'épaisseur de la couche intermétallique. Parce que le fer présente une plus grande affinité pour l'aluminium que pour le zinc, il se crée une couche à l'interface du fer et du zinc appelée couche d'inhibition de composition  $\text{FeAl}_3$  -  $\text{Fe}_2\text{Al}_5$ . Celle-ci empêche la diffusion du  $\text{Zn} \rightarrow \text{Fe}$  et/ou du  $\text{Fe} \rightarrow \text{Zn}$ . L'adhérence obtenue est de très bonne qualité et la résistance mécanique contrairement aux couches intermétalliques Fe-Zn est largement améliorée.

De plus l'addition d'aluminium, même inférieure à 0.5% dans le zinc (Fig.10), provoque l'augmentation de la ductilité de ce métal par suite de l'affinage des grains dans le processus de solidification.

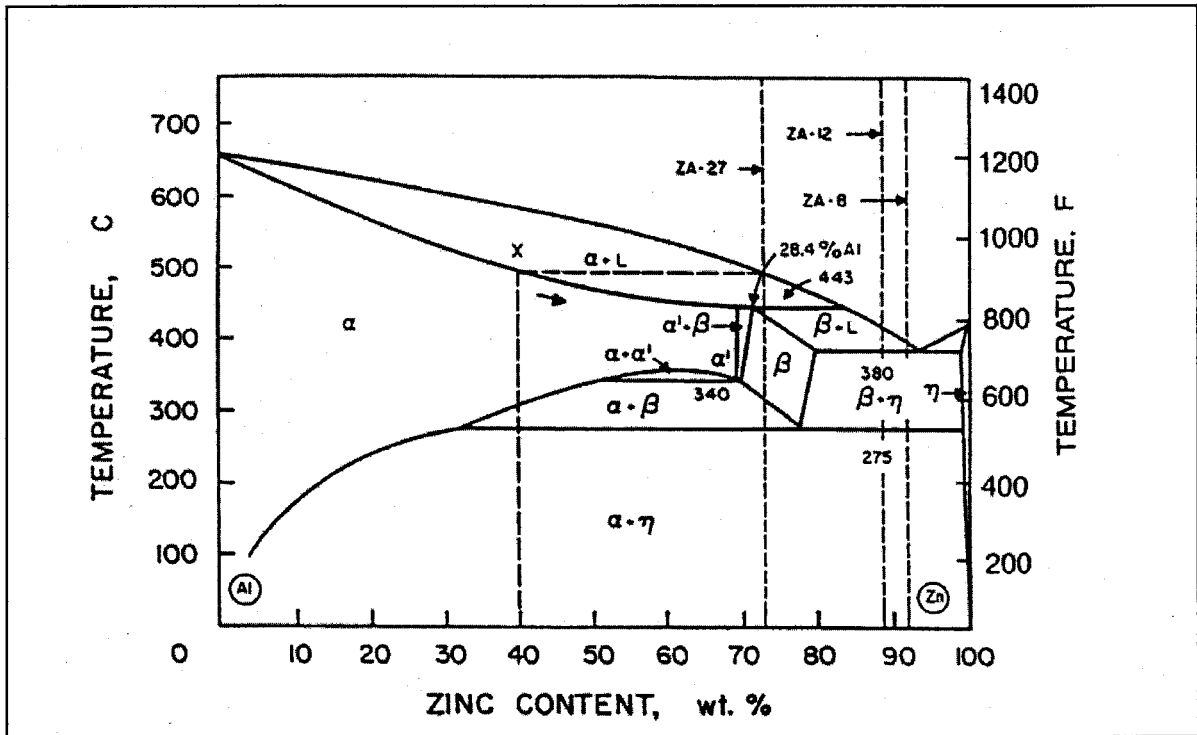


Figure 10 : Diagramme de phase Zinc Aluminium [Gervais et al., (1985)]

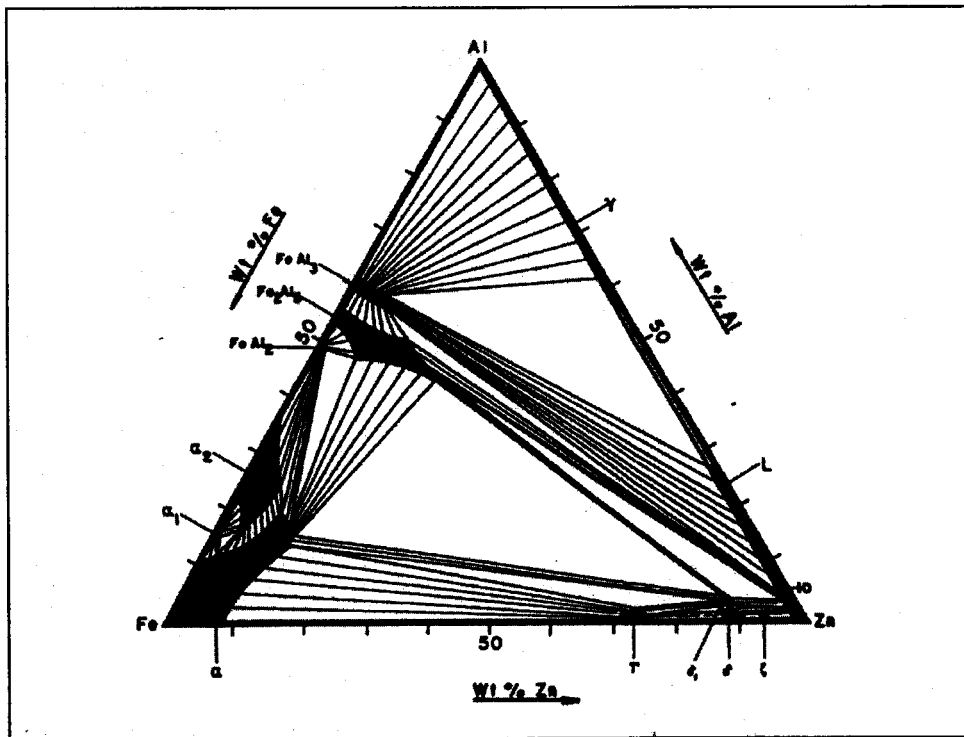


Figure 11 : Diagramme ternaire Zn-Fe-Al.



### III.3.3 Les autres éléments d’alliage

Le plomb (souvent présent à titre d’impureté et accompagnant le zinc) est utilisé uniquement pour une croissance exagérée des cristaux de zinc. Il est pratiquement insoluble dans le zinc et il forme des précipités aux joints de grains du zinc ou alors il se distribue de manière aléatoire dans la couche de zinc, soit en amas, soit de façon isolée. L’épaisseur de la couche intermétallique obtenue avec un bain contenant de l’aluminium ne dépend pas de la teneur en plomb (jusqu’à 2.0% Pb en poids).

A l’heure actuelle l’utilisation du plomb tend à disparaître pour des raisons écologiques.

L’ajout d’antimoine (Sb) a le même effet que celui de plomb. Il forme des précipités aux joints de grains et provoque une croissance exagérée de la taille de grains [Fasoyinu et al. (1990)].

Les éléments manganèse et nickel sont ajoutés au bain de zinc pour palier aux influences néfastes d’une forte teneur en Si de l’acier [Foct et al. (1993)]. Ceci est vrai essentiellement dans la galvanisation au trempé.

### III.4 Microstructures - Taille des domaines :

Dans sa thèse, Lazik a introduit le concept de taille de domaine pour les revêtement des aciers galvanisés. En effet, Lazik s’est aperçu que la taille de grain du zinc ne pouvait être un paramètre représentatif du comportement à la fissuration et qu’il n’était pas possible de la corrélérer aux résultats de texture. Ce nouveau paramètre de taille des domaines est également déterminant lorsqu’on considère la fissuration et la propagation des fissures dans le revêtement.

Définition du concept de domaine [Lazik (1997)] :

*"Un domaine correspond à une zone homogène tant du point de vue de la microstructure que de l’orientation. La taille d’un domaine correspond donc à la distance moyenne de cette zone entre les deux joints incohérents les plus proches."*

Dans le cas d’un échantillon dont la texture basale est très marquée, de nombreux grains voisins ont la même orientation. La taille de domaine est donc l’ensemble de ces grains et est supérieure à la taille de grains.

Dans le cas où cet échantillon est skin-passé, de nouveaux grains se sont formés par déformation ou par recristallisation partielle dans de nouvelles orientations au sein des anciens grains. La taille de domaine est alors plus petite que la taille de grains.

La notion de domaine d'orientation est également reprise par Sémoroz et al. (2002) dans une étude sur les revêtements galvanisés par EBSD (Electronic Back Scattered Diffraction). Les échantillons étudiés n'ont pas subi de skin-pass et 80 % des grains ne contiennent qu'une et une seule orientation (les 20% restants comportent quelques macles et seront appelés des grains polycristallins). La plupart des grains ont des orientations communes  $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ ,  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$  ou  $\langle 0001 \rangle$  suivant la direction normale ou de laminage. D'autre part la faible épaisseur du revêtement et la cinétique de croissance de grain du zinc favorise la nucléation du zinc suivant l'orientation préférentielle  $\langle 0001 \rangle$ . Ce qui explique la texture fortement basale du zinc galvanisé et les relations d'orientations entre les grains pour former des domaines.

### III.5 Texture :

Les textures des revêtements de zinc présentent une bonne homogénéité, tant dans l'épaisseur qu'en surface (à quelques variations statistiques près). En général, ces revêtements ont une texture de fibre  $\langle 0001 \rangle // \text{DN}$ , dont l'intensité est plus ou moins marquée suivant le type d'échantillon.

Pour une même densité d'orientations, lorsque les grains sont petits et ont des orientations de type aléatoire, l'intensité de texture est faible ; par contre si les grains sont gros ou qu'ils ont des orientations très proches (taille de domaine importante) alors l'intensité de texture sera très marquée.

## IV. Mécanismes de déformation du zinc :

### IV.1 Modes de glissement :

Pour réaliser une déformation homogène générale sans changement de volume, 5 systèmes de cisaillement indépendants [Von Mises (1928)] sont requis dans le polycristal. Un système de cisaillement est indépendant à condition que son activation produise un changement de forme du cristal qui ne puisse pas être réalisée par la combinaison de glissements sur d'autres systèmes [Partridge (1967)]. En fait, la ductilité du zinc (et de ses alliages) s'explique par l'existence de plusieurs modes de déformations:

- glissement  $\langle 11\bar{2}0 \rangle$  dans le plan de base, qui est le système prédominant pour les rapports  $c/a > 1.633$  [Partridge (1967), Taylor (1938)] (voir tableau 2) ;
- glissement dans les systèmes prismatiques et pyramidaux, qui devient d'autant plus actif que la température de déformation est plus élevée ;

- maclage (en général à température modérée) qui entraîne une déformation et une modification de l’orientation du cristal, permettant l’activation du glissement basal dans la partie maclée [Mahajan et al. (1973)] ;
- formation de bandes de pliages lors de la déformation dans la direction [0001] [Racek (1995)].

Indépendamment de la possible superposition de plusieurs modes de déformation, le glissement pyramidal de seconde espèce est le seul à fournir les 5 systèmes de glissements (Fig. 12) indépendants requis pour accommoder un état de déformation quelconque.

Des résultats de modélisation [Philippe et al. (1994b), Mellab (1992)] montrent d’autre part que lorsque le glissement basal ne peut plus intervenir, les glissements pyramidal  $\langle c+a \rangle$  et prismatique peuvent se déclencher.

Systèmes de glissement	Plans et directions de glissement	Nombre de systèmes de glissement	Multiplicité ***
Basal	$\{00.1\}\langle 11.0 \rangle$	3	2
Prismatique	$\{10.0\}\langle 11.0 \rangle$	3	2
Pyramidal 1 <sup>ère</sup> espèce	$\{10.1\}\langle 11.0 \rangle$	6	4
Pyramidal 2 <sup>ième</sup> espèce	$\{11.2\}\langle 11.3 \rangle$	6	5

\*\*\* :Nombre de systèmes de glissement indépendants

Tableau 2 : description des systèmes de glissement des alliages de zinc.

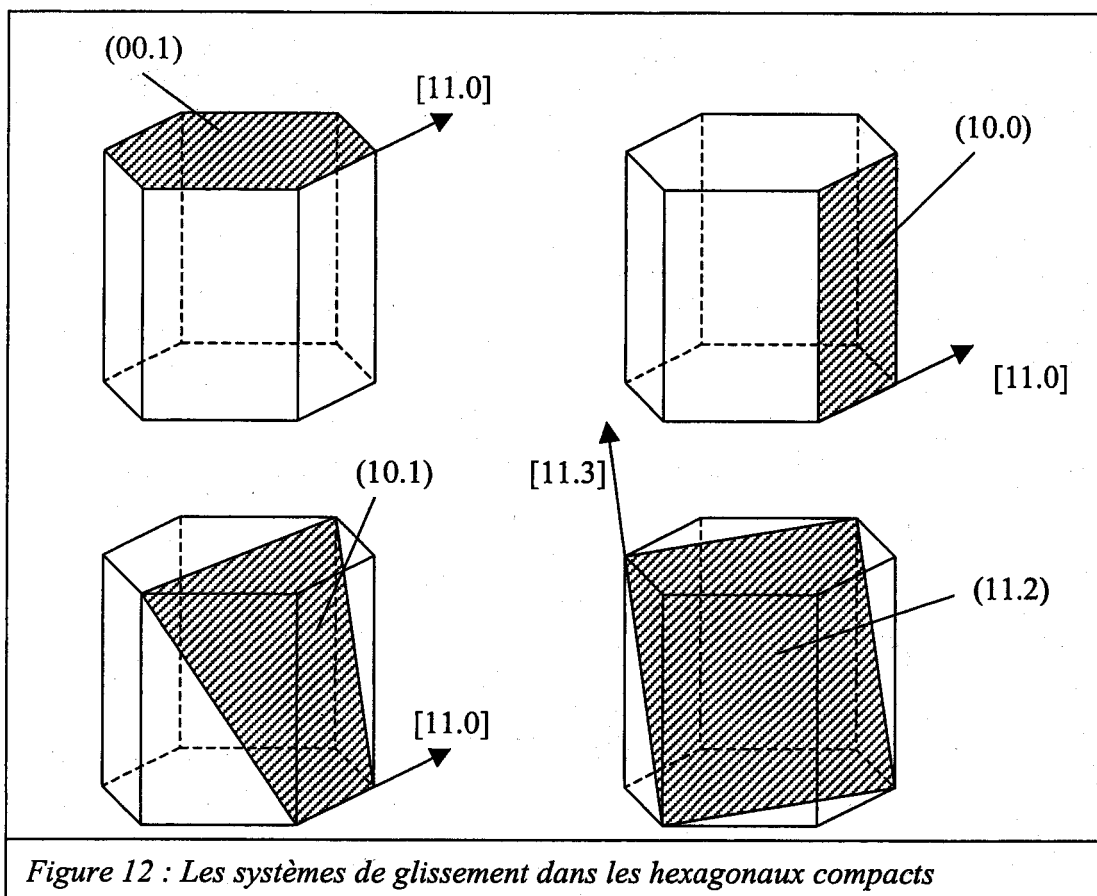


Figure 12 : Les systèmes de glissement dans les hexagonaux compacts

IV.2 Maclage :

Dans la description géométrique du maclage (Fig. 13) une sphère est transformée en ellipsoïde. Ceci permet de comprendre comment les atomes subissent un cisaillement selon la direction de maclage et parallèlement au plan de maclage. La représentation des éléments de maclage se fait par :

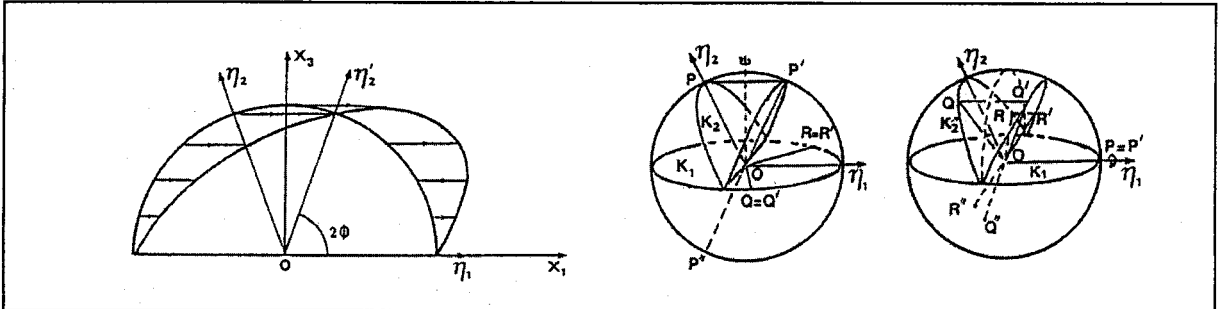


Figure 13 : Eléments conventionnels décrivant le maclage. L’hémisphère supérieure est cisailée en une demi ellipse par maclage le long de la direction  $\eta_1$ .

- K1, plan de maclage (ne subit aucune déformation ni désorientation)
- $\eta_1$ , direction de cisaillement contenue dans K1
- K2, plan non déformé avant rotation, devient K2’ après rotation
- $\eta_2$ , intersection du plan de cisaillement avec K2, devient  $\eta_2'$  après maclage
- Taux de cisaillement :  $S=2.\cot(2\phi)$  ou  $2\phi$  représente l’angle entre les deux plans K1 et K2.

Dans le cas du zinc, le maclage correspond à une déformation de 7 % et l’angle de désorientation entre le grain initial et sa partie maclée est de  $86^\circ$  environ. Le taux de cisaillement S au cours du maclage est également fonction du rapport c/a (Fig. 14). Dans le cas des cristaux de structure hcp, pour la famille courante de macles  $\{10.2\}\langle 10.1\rangle$ , ce taux s’écrit :  $S = \frac{3-(c/a)^2}{(c/a)\sqrt{3}}$ , [Mei, 1993]

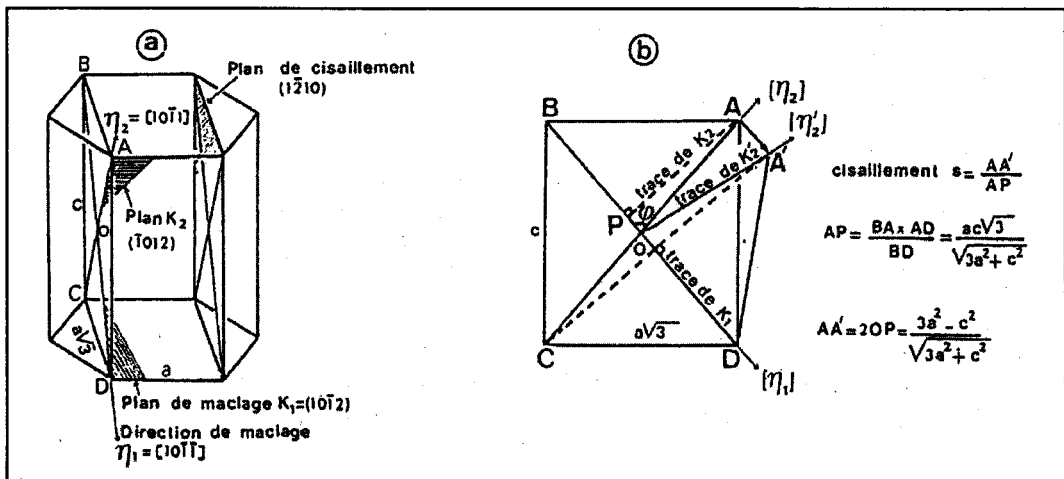


Figure 14 : Description schématique du maclage dans le zinc.

Pour le zinc, la valeur obtenue pour ce cisaillement  $S=0.14$  (Fig. 15), est nettement plus faible comparativement à un cristal cubique ( $S=0.707$ ). Ceci contribue au fait que le zinc active facilement le maillage lors de déformations.

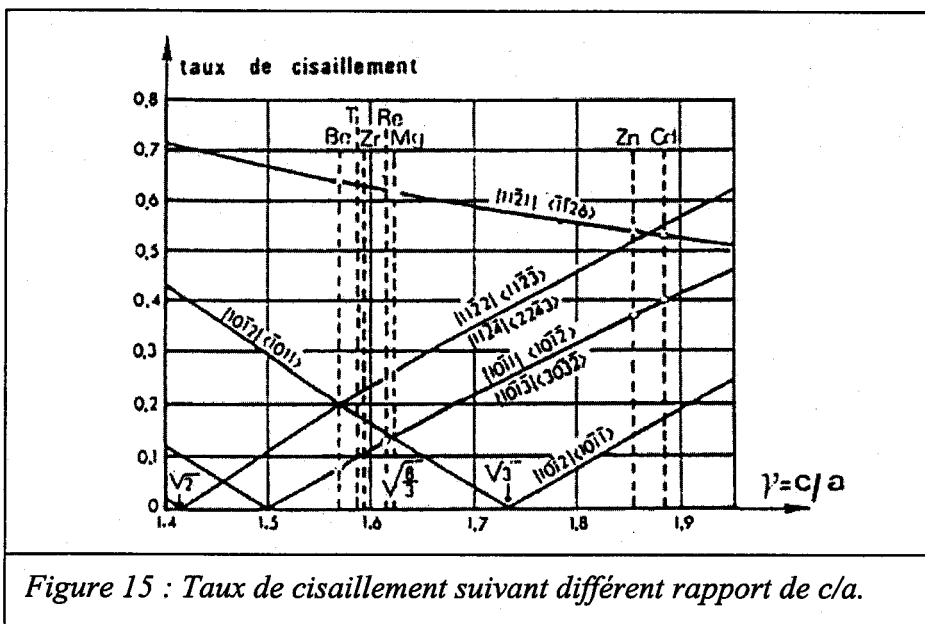


Figure 15 : Taux de cisaillement suivant différent rapport de c/a.

Le maillage provoque une réorientation de la partie maillée du réseau cristallin, ce qui favorise la réactivation du glissement basal [Mahajan et al. (1973)].

Le maillage  $(10.2) <10.1>$  est observé dans le zinc comme dans le Cadmium, le Magnésium, le Béryllium où il est le seul mode de maillage. D’autres systèmes de maillages apparaissent dans certains métaux de type hexagonal compact (Ti, Zr) [Partridge (1967)].

#### IV.3 Cission critique :

La loi de Schmid et Boas [Schmid et al. (1950)] permet de décrire la relation entre l’orientation et la contrainte macroscopique du cristal. En fonction de la cission résolue,  $\tau$ , les modes de déformations sont activés selon que leur cission critique est atteinte ou non. La cission résolue dépend de l’orientation de la contrainte macroscopique appliquée par rapport aux axes cristallographiques (Fig. 16).

$$\tau = \sigma \cos \Phi \cos \lambda = \sigma_{13}$$

où  $\tau$  est la cission résolue,  
 $\sigma$  la contrainte uniaxiale appliquée.

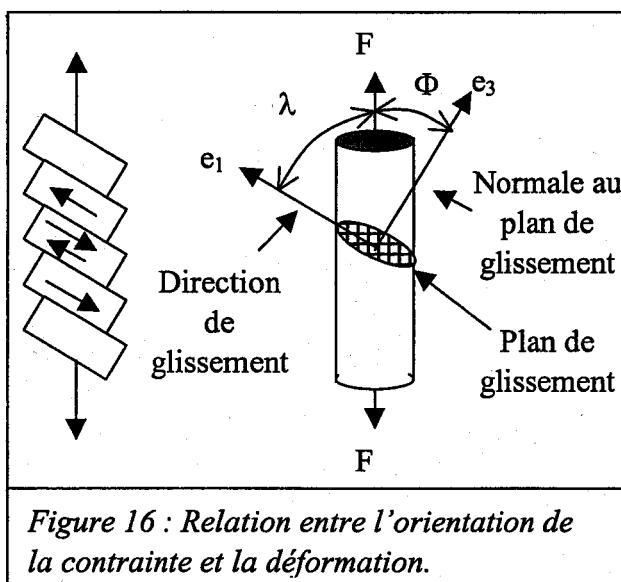


Figure 16 : Relation entre l’orientation de la contrainte et la déformation.

$\Phi$  et  $\lambda$  sont les angles entre l’axe de la contrainte et respectivement, la normale au plan de glissement et la direction de glissement.

Le facteur géométrique  $\cos \Phi \cos \lambda$  est couramment appelé le facteur de Schmid.

Lorsqu’un monocristal est déformé plastiquement, il est le siège d’une rotation progressive des plans de glissement, rotation associée aux glissements des dislocations sur les plans cristallographiques. Le même phénomène se produit pour les grains d’un polycristal que l’on déforme.

Pour activer un système  $\{hkl\}\langle uvw \rangle$ , il est nécessaire, dans le plan de glissement, de dépasser une contrainte minimale appelée contrainte critique de cisaillement résolue (CRSS)  $\tau_c$ . La déformation s’amorce quand la cission, résolue sur un plan cristallographique de glissement et dans la direction de glissement, atteint cette valeur critique  $\tau_c$  qui est caractéristique du système de glissement et qui est fonction de la température, de la vitesse de déformation et de la composition chimique de l’alliage [Marder (1990)].

Wégria (1984) a montré que la cission critique du glissement basal du zinc polycristallin s’élève à 0.18Mpa. Stahl et Margolin [Stahl et al. (1984)] ont déterminé la contrainte d’écoulement pyramidal dans des monocristaux de zinc entre 77–298 K et pour une vitesse de déformation comprise entre  $10^{-5}$ – $10^{-1}$ s $^{-1}$  environ. Les valeurs de cission critique déterminées sont dans l’intervalle de 3 à 4 Mpa. D’autres auteurs avancent des valeurs de cissions critiques de cisaillement basal de l’ordre de 0.1 à 0.38 Mpa [Adams et al. (1968), Mikulowski (1996)] alors que . Fundenberger et al. (1997) propose une identification des cissions critiques par l’évolution de texture d’un polycristal où  $\tau_{c \text{ bas}}$  est unitaire. Les rapports de cissions sont alors pour les différents systèmes :

$$\tau_{c \text{ prism}}/\tau_{c \text{ bas}}=15 ; \tau_{c \pi 2}/\tau_{c \text{ bas}}=10 ; \tau_{c \text{ twin}}/\tau_{c \text{ bas}}=30$$

#### IV.4 Influence des joints de grains

Aux températures  $T < T_f/2$  ( $T_f \sim 692$ K, température de fusion en Kelvin), la déformation plastique est aussi associée au glissement intragranulaire. Les joints de grains agissent comme des barrières en arrêtant le glissement. Des défauts d’empilement dans les plans de base peuvent se former par précipitation de lacunes générées, par exemple, par déformation à froid. A partir d’une certaine longueur d’empilement, la contrainte en tête d’empilement, c’est à dire aux joints de grains, peut activer les sources de dislocations dans les grains adjacents et donc transmettre la déformation plastique [Partridge (1967)].

L’effet de taille de grain a été décrit par la relation de Hall et Petch [Mueller et Haessner (1981a)] :

$$\sigma_s = \sigma_i + \frac{K}{\sqrt{d}}$$

Avec  $\sigma_s$  la limite élastique du polycristal,  $\sigma_i$  la contrainte interne qu’il faut vaincre pour déplacer les dislocations,  $K$  la résistance du joint de grain à la déformation plastique et  $d$  la taille moyenne

des grains. Un affinement du grain correspond à une augmentation de la limite élastique (pour les grains de taille supérieure à la taille de transition de 6  $\mu\text{m}$  environ) [Mueller et Hassner (1981b)].

#### IV.5 Fissuration :

Il existe deux modes de fissuration distincts : la fissuration intergranulaire et la fissuration intragranulaire, appelée aussi clivage. Le premier mode à s’activer sous de faibles contraintes est la fissuration intergranulaire, mode le plus fréquent. [Jaffrey (1980), Wall (1984)]

##### IV.5.1 Fissuration intergranulaire :

Les fissures intergranulaires peuvent être d’origine thermique comme c’est le cas pour certains revêtements de zinc. Elles se créent pendant le refroidissement dès la sortie du bain de galvanisation [Jaffrey (1980), Rangarajan (1989), Wall (1984), Willis (1995)]. En effet, comme le zinc et l’acier n’ont pas le même coefficient de dilatation thermique ( $\alpha_a=14.10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ,  $\alpha_c=60.10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ,  $\alpha_{\text{polycristal}}=26.10^{-6} \text{ K}^{-1}$  pour le zinc, et  $\alpha_a=12.10^{-6} \text{ K}^{-1}$  pour l’acier) le refroidissement générera des contraintes internes liées à la contraction lors de la solidification et du refroidissement du revêtement. De plus la limite élastique du zinc (70Mpa) étant bien inférieure à celle d’un acier doux (200 Mpa), le zinc accommodera en premier les contraintes résiduelles et sera donc le siège de fissures intergranulaires [Jaffrey (1980)].

##### IV.5.2 Fissuration intragranulaire (clivage) :

Le clivage (Fig. 17) est un mode de rupture qui apparaît sous certaines sollicitations dans les alliages hexagonaux. Dans le zinc, la rupture la plus facile à activer est le clivage suivant les plans cristallographiques (00.1) [Bénard (1984)] en raison du rapport  $c/a$  élevé.

La loi de Sohncke [Lhuire (1984), Dieter G.E.] permet de définir la contrainte  $\sigma_n$  appliquée dans la direction normale au plan de clivage pour une contrainte  $\sigma$  donnée appliquée :  $\sigma_n = \sigma \cdot \cos^2 \Phi$ , où  $\Phi$  est l’angle entre la direction de traction uniaxiale et la normale au plan de clivage.

Le clivage est à l’origine de la fissuration intragranulaire. Néanmoins le clivage se forme moins fréquemment que la fissuration intergranulaire et peut se produire simultanément avec la fissuration intergranulaire [Jaffrey (1980)] ou apparaître progressivement [Wall (1984)]. Les fissures intragranulaires restent à l’intérieur d’un grain sans se propager dans le grain adjacent [Jaffrey (1980)], du moins lorsqu’il existe une désorientation suffisante entre les deux grains adjacents. Elles sont initialement toutes parallèles à l’intérieur des grains, mais des fissures supplémentaires, ayant des orientations différentes, peuvent se former au cours de la déformation.

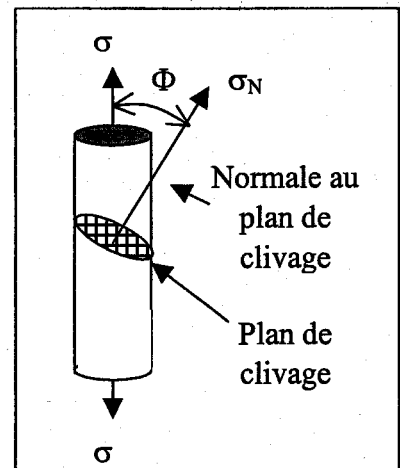


Figure 17 :  
Représentation du clivage.

Le clivage a été également observé dans les plans {11.0} et {11.2} (Tableau 3) et aux interfaces des macles dans des matériaux hexagonaux soumis à des contraintes cycliques [Partridge (1967)].

Plan de clivage	Plan parallèle à la surface	Références
(00.1)	non basal {10.0}, {10.1}	Jaffrey (1980)
{11.0}	(00.1) {10.0}, {10.1}	Partridge (1967)
{11.2}	(00.1)	
(10.2)		

Tableau 3 : Clivage dans le zinc

#### IV.5.3 Préfissuration :

La préfissuration des matériaux zinc peut exister et est généralement due à la contraction de solidification dans le procédé de galvanisation et aux différences des coefficients de dilatation linéaire  $\alpha$  des matériaux zinc et fer.

L’étude de Lazik (1997) montre l’existence de préfissuration intergranulaire et intragranulaire. Dans cette étude les matériaux de texture très basale à gros grains possèdent de plus larges fissures intergranulaire que les matériaux à plus petits grains et à texture moins marquée. En effet les éléments d’addition Plomb et Antimoine ont pour effet d’augmenter la taille de grain et la forte texture basale, ce qui n’est pas sans conséquence sur la préfissuration.

#### V. Evolution des textures, microstructures, fissurations à la déformation du zinc galvanisé :

Les comportements en texture et en résistance à la fissuration ne sont pas les mêmes suivant le type de déformation appliquée, en effet les états de contraintes diffèrent.

Les résultats expérimentaux présentés ci-après sont issus d’un rapport interne [Vincent (2003)] sur l’évolution des textures et des microstructures d’un revêtement d’acier galvanisé (bain : Zn+0.2%Al) au cours de déformations par essai de traction et par essai Marciniak.

L’essai Marciniak consiste à emboutir une tôle maintenue entre deux serre flancs à l’aide d’un piston cylindrique. Cet emboutissage donne un fond plat et des flancs de forme conique (Fig. 18a).



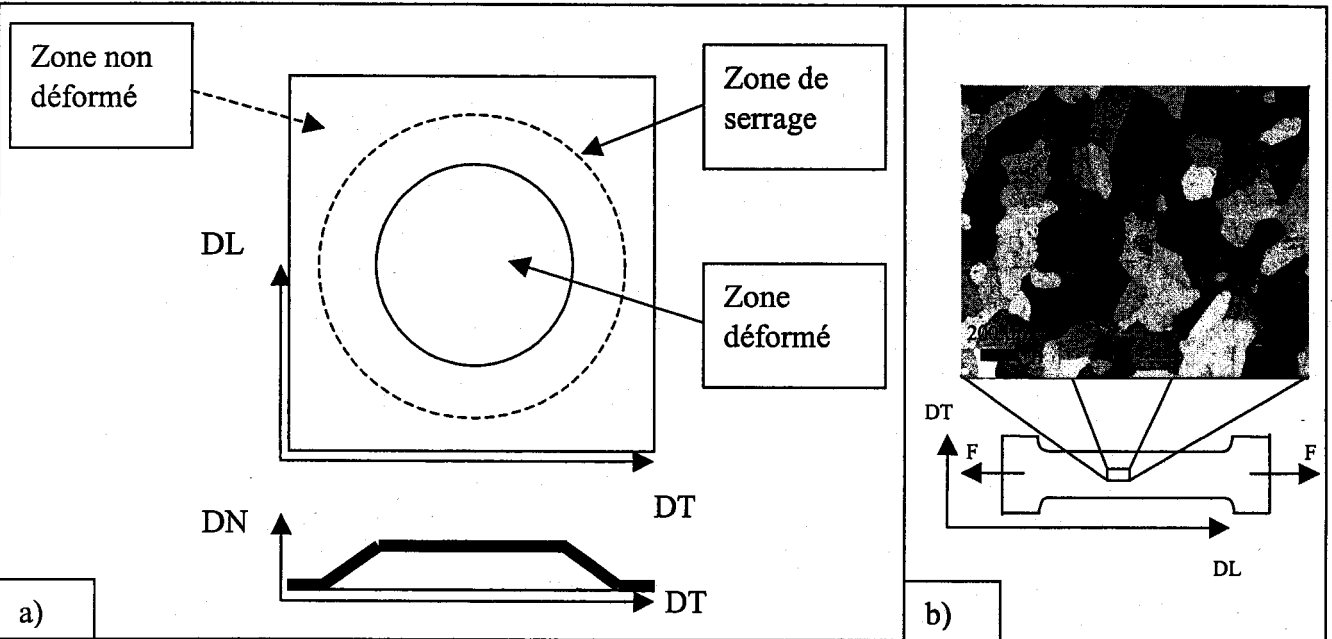


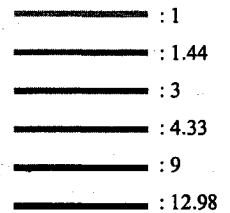
Figure 18 : a) Géométrie de l'essai Marciniak industriel ; b) Géométrie de l'essai de traction

L’essai de traction est réalisé sur des éprouvettes planes comportant deux têtes et une partie centrale de section plus petite afin d’y concentrer les contraintes et les déformations. Les éprouvettes de traction sont déformées suivant la direction de laminage (Fig. 18b).

Avant déformation les échantillons sont polis mécaniquement puis attaqués chimiquement avec la solution de Finkeldey (200g de  $\text{CrO}_3$ , 10g de  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , 1 litre de  $\text{H}_2\text{O}$ , 50 à 80 ml d’ $\text{HNO}_3$ ) afin de révéler la microstructure. Les tailles de grains varient de 400 à 600  $\mu\text{m}$  respectivement pour les échantillons d’essai de traction et d’essai Marciniak. Une tôle galvanisée qui a subi un skin-pass a également été étudiée en essai Marciniak.

La préfissuration a été observée uniquement pour les tailles de grains de 600  $\mu\text{m}$ .

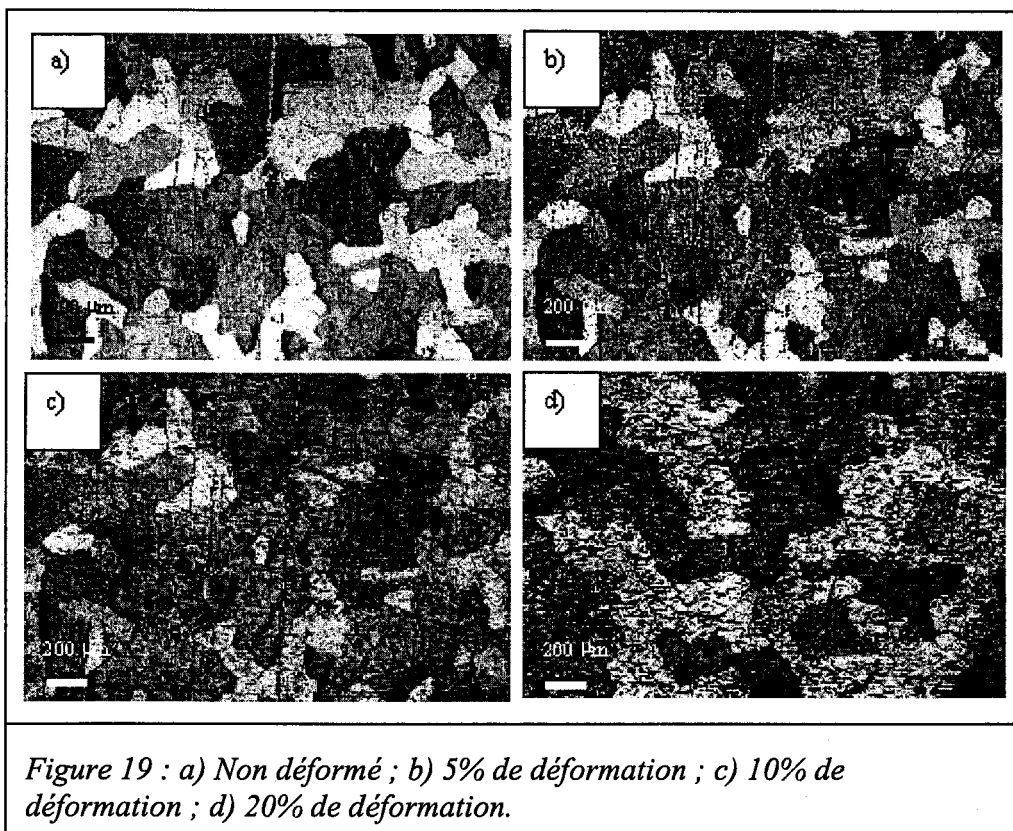
Les figures de pôles issues de la détermination de texture ont été recalculées par la méthode harmonique [Bunge (1993)] à partir de cinq figures de pôles expérimentales (mesurées avec un goniomètre à rayon X). Les lignes de niveaux utilisées (ci contre) sont identiques pour toutes les figures de pôles (sauf précision contraire) :



### V.1 Relation Texture Fissuration dans l'essai de traction

L’essai de traction a permis de mettre en évidence l’apparition du maclage et de la fissuration inter- et intra-granulaire (Fig. 19). Les grains qui ne maclent pas, accommodent la déformation par glissement cristallographique ou par clivage.

La déformation plastique de l’acier galvanisé s’accompagne d’un changement de texture de la couche de zinc au cours de l’essai de traction.



A l'état non déformé les figures de pôles recalculées (00.2) et (10.0) (Fig. 21a) montrent que le revêtement de l'échantillon présente une texture de fibre basale autour de DN. Quelques grains présentent toutefois une orientation prismatique avec leurs directions  $\langle 10.0 \rangle //$  à DN.

Après 5% de déformation des fissures intergranulaires apparaissent (Fig. 19b). Les joints de grains constituent en effet l'un des points faibles du matériau vis à vis de la fissuration. Certains grains commencent à macler (Fig. 20). Ces grains présentent une orientation défavorable pour activer du glissement et accommodent la déformation par maclage.

Les figures de pôles (Fig. 21b) montrent un renforcement de la composante prismatique au cours de la déformation. Ceci s'explique par l'apparition des macles. De plus les figures de pôles (10.0) montrent que la direction [11.0] tend à s'orienter parallèlement à DL.

Après 10% de déformation, les joints de grains orientés perpendiculairement à la direction de traction sont les lieux privilégiés pour la fissuration (Fig. 19c). Le maclage est toujours actif et se renforce comme le montrent les figures de pôles (Fig. 21c). Notamment sur les figures (00.2) la composante de maclage augmente alors que la composante basale diminue au centre des figures de pôles (00.1).



Figure 20 : Maclage après 5% de déformation.

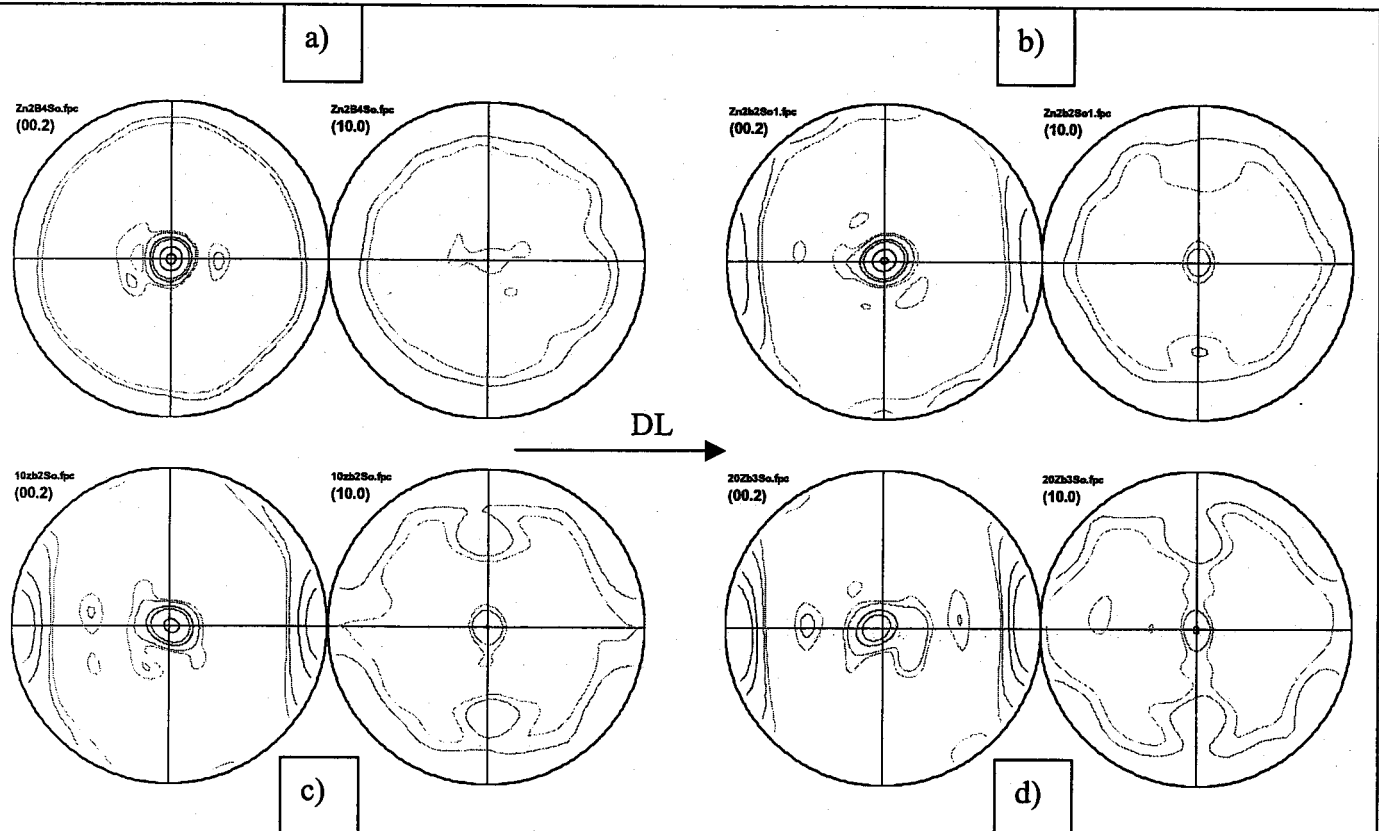


Figure 21 : figure de pôles (00.2) et (10.0) ; a) non déformé ; b) 5% de déformation ; c) 10% de déformation ; d) 20% de déformation.  
DL = Direction de Laminage pour les figures de pôles.

Après 20% de déformation, l'échantillon présente un faciès perturbé accompagné d'une ondulation de surface perpendiculaire à la direction de traction et de la fissuration à l'intérieur des grains (Fig. 22a). On observe également l'apparition de sous-joints au sein de certains grains (Fig.22b).

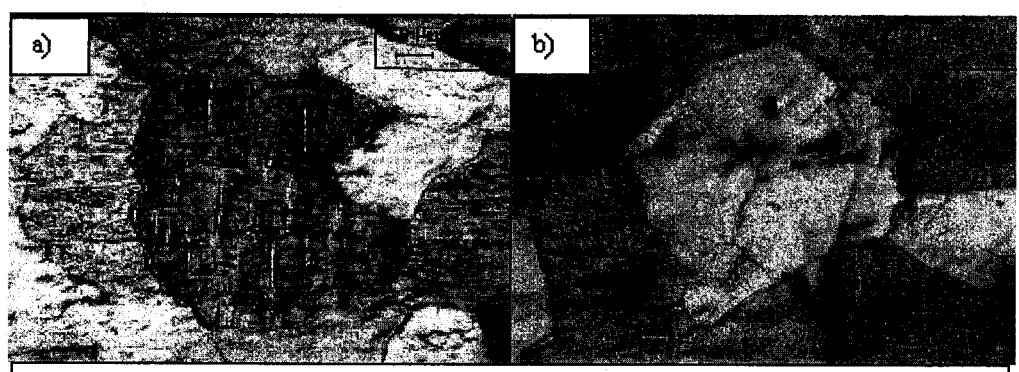


Figure 22 : a) Fissuration intragranulaire après 20% de déformation ; b) Formation de sous joints de grain (20% de déformation).

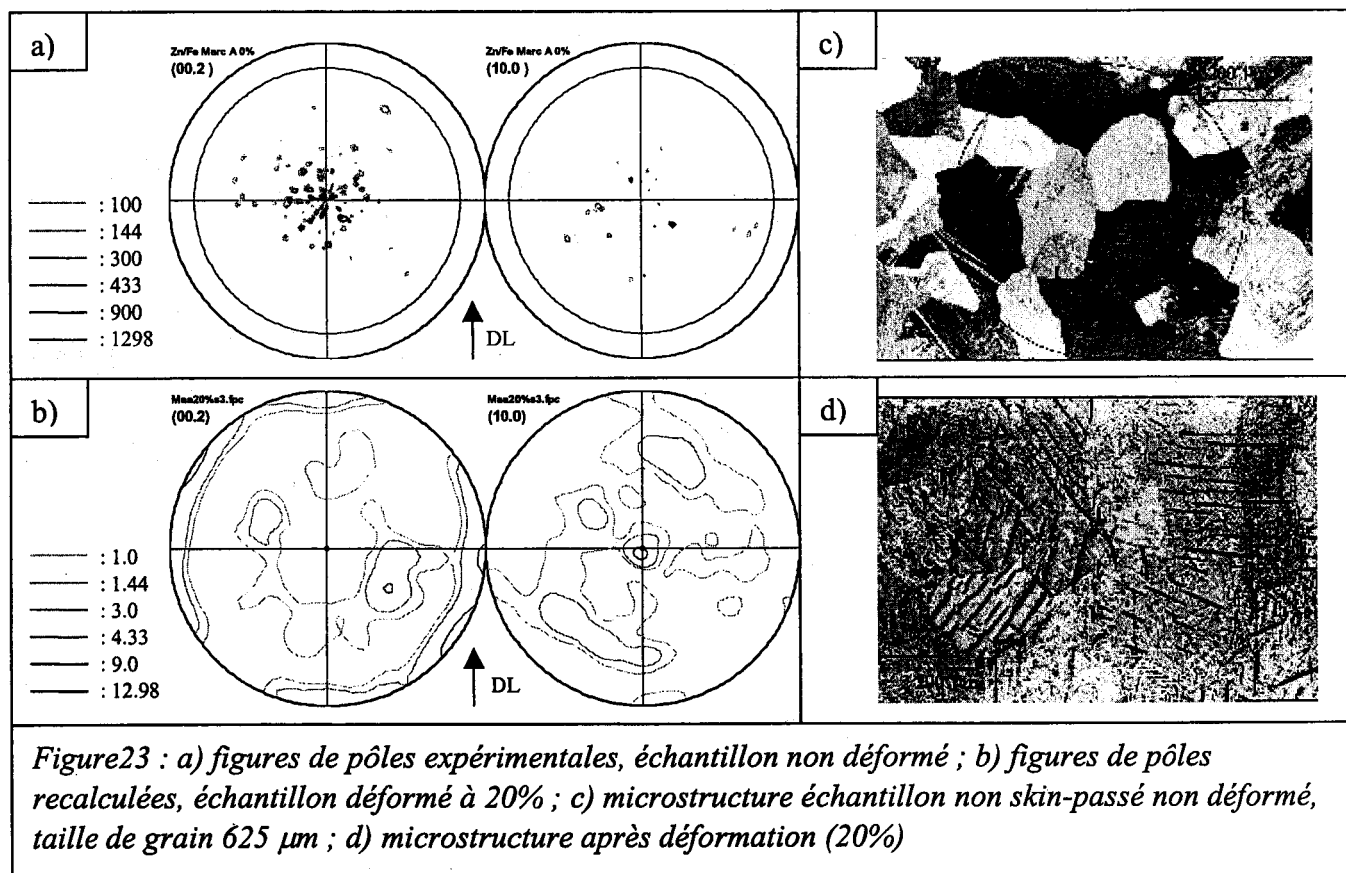
L'apparition de la fissuration au cours de la déformation commence donc d'abord par de la fissuration intergranulaire, puis à de forts taux de déformation la fissuration intragranulaire se manifeste.

L'étude des figures de pôles à 20% de déformation nous montre aussi l'augmentation de la composante de maillage suivant DL et la diminution de la composante basale sur la figure de pôles (00.1). On voit alors la disparition de la texture de fibre au profit d'une composante basale avec l'axe  $\langle a \rangle$  parallèle à DL et d'une composante prismatique avec l'axe  $\langle c \rangle$  parallèle à DL. En conclusion, plus la composante prismatique - visible sur la figure de pôles (10.0) - est importante, plus le taux de maillage est important, et plus le clivage ne s'activera donc que dans les derniers stades de la déformation.

### V.2 Relation Texture Fissuration dans l'essai Marciniak:

L'essai Marciniak a également permis de mettre en évidence l'apparition du maillage et de la fissuration inter- et intra-granulaire (Fig. 23d).

#### V.2.1 Figures de pôles de l'éprouvette non skin-passée, non déformée et déformée:



Ces figures correspondent au cumul de trois figures mesurées aux rayons X. On distingue (Fig. 23a) plusieurs pics assez intenses autour du centre de la figure de pôles, ce qui indique une orientation plutôt basale de la texture cristallographique du revêtement.

On notera que pour recalculer ces figures on ne dispose pas d'une très bonne statistique, en effet la taille des grains du revêtement est très importante.

Les textures de l’échantillon déformé à 20% peuvent être recalculées parce qu’il y a eu formation de nombreuses macles (Fig. 23d) et d’orientations différentes, ce qui entraîne un affinement de la taille des domaines cohérents de diffraction. La texture de fibre disparaît pour laisser place à quatre composantes principales symétriques deux à deux sur la figure de pôles (00.2). Les deux premières sont situées à 35° de la direction normale à la tôle. Les deux dernières sont dans le plan de la tôle. Le maclage peut être identifié sur la figure de pôles (10.0).

L’observation qualitative des échantillons déformés à 20% montre beaucoup de fissures intragranulaires. Les fissures ont toutes la même orientation dans un même grain et changent d’orientation d’un grain à l’autre. Quelques grains comportent cependant de plus petites fissures orientées perpendiculairement aux premières. La fissuration n’apparaît pas dans tous les grains mais le maclage peut-être à la fois dans les grains fissurés et non fissurés.

Les fissures intergranulaires sont présentes mais en moindre quantité par rapport à la fissuration intragranulaire.

V.2.2 Figures de pôles de l’éprouvette skin-passée, non déformée et déformée:

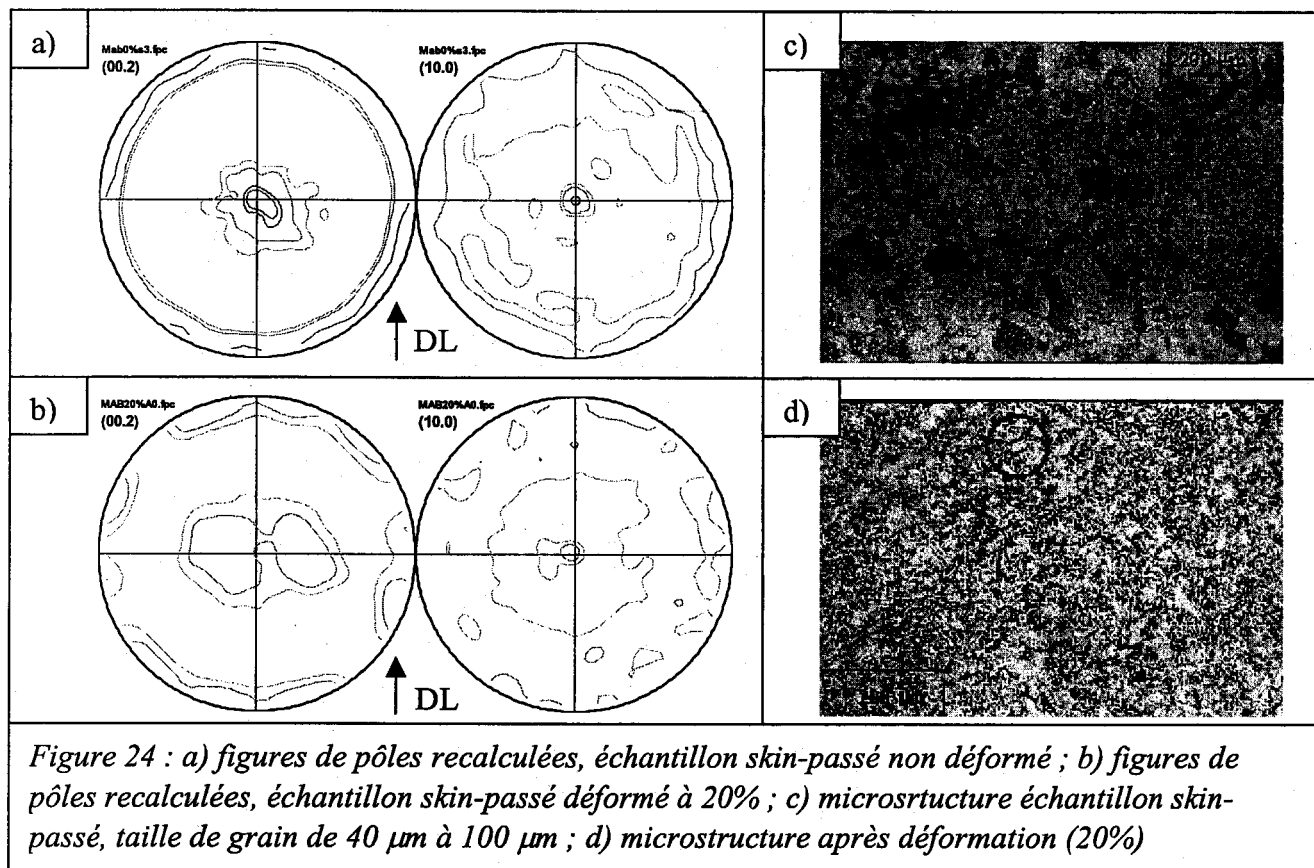


Figure 24 : a) figures de pôles recalculées, échantillon skin-passé non déformé ; b) figures de pôles recalculées, échantillon skin-passé déformé à 20% ; c) microstructure échantillon skin-passé, taille de grain de 40  $\mu\text{m}$  à 100  $\mu\text{m}$  ; d) microstructure après déformation (20%)

La figure de pôles (00.2) de l’échantillon non déformé met en évidence une composante centrale qui traduit une orientation basale des grains et une composante prismatique qui est due au maclage subi par la déformation de skin-pass.

Après une déformation de 20% par essai Marciniak, la composantes basale sur la figure de pôles (00.2) se divise en deux sous-composantes et s’étale le long de la direction transverse.

La Figure 24d montre que les fissures se propagent préférentiellement dans les zones où les grains sont les plus gros (voir cercle bleu sur la photo), mais néanmoins la fissuration est plus faible que pour des revêtements à gros grains (Fig. 23d).

Pour caractériser quantitativement la résistance à la fissuration de nos revêtements, nous avons calculé un coefficient  $C_f$ , exprimant la longueur totale de fissure par unité de surface (Fig.25).

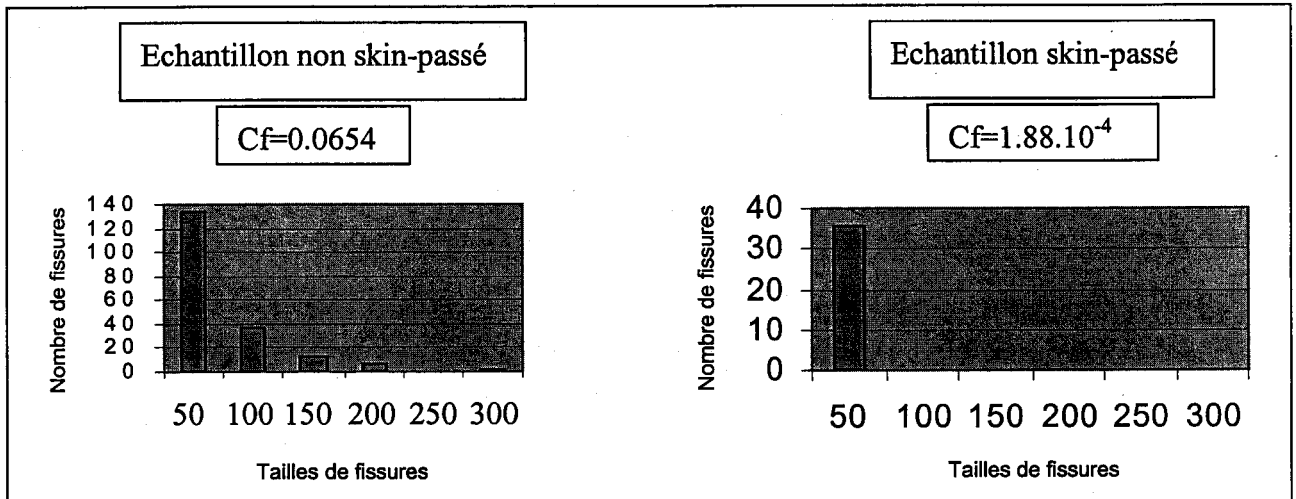


Figure 25 : Répartition des fissures en fonction de leur longueur ( $\mu\text{m}$ ) pour des échantillons non skin-passé et skin-passé. Résultat du coefficient  $C_f$

Ces diagrammes nous permettent de conclure que la formation de petits grains et l'étalement de la texture par le skin-pass augmentent la résistance à la fissuration.

### V.2.3 Conclusions :

La première partie de l'étude qui portait sur l'essai de traction, met en évidence une fissuration prédominante aux joints de grains.

La texture ne change pas fondamentalement, les pics dus aux macles ne font que se renforcer suivant la direction de traction.

Ce n'est qu'à partir de 20%, de déformation que la fissuration intragranulaire commence à apparaître.

Par contre la seconde partie de l'étude qui porte sur l'essai Marciniak, met en évidence une fissuration prédominante à l'intérieur des grains.

La texture change par l'intermédiaire de la composante basale qui est très centrale sur la figure (00.2) avant déformation et qui se sépare en deux sous-composantes après déformation.

La figure 26 empruntée à Lazik (1997) résume bien le comportement à la déformation en fonction de l'orientation des axes c représentés par les zones noires. Le zinc galvanisé a généralement une texture de fibre après solidification. L'orientation des axes c peut donc être catégorisée en 4 types distincts :

Inclinaison des axes  $c$  par rapport à DN

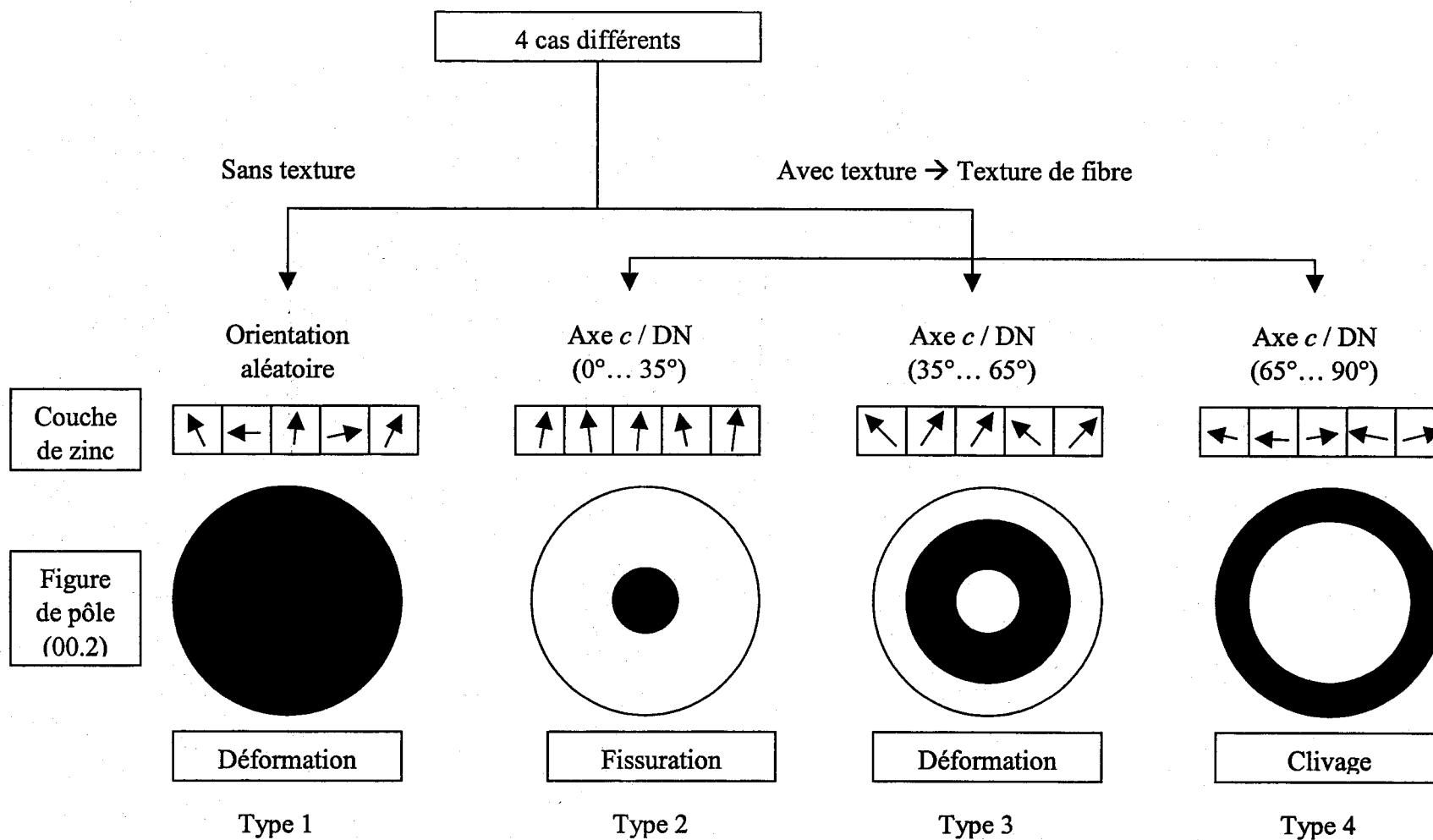


Figure 26 : Types de textures et principales déformations [Lazik (1997)].

- orientations aléatoires (axe c/DN de 0° à 90° (type1))
- axe c/DN de 0° à 35° (type 2)
- axe c/DN de 35° à 65° (type 3)
- axe c/DN de 65° à 90° (type 4)

Le "type 3" est le plus favorable à la déformation puisque celui-ci ne présente ni clivage, ni fissuration. Ce groupe est généralement représenté par les revêtements électrozingués qui possèdent un bon comportement en déformation, et la texture diffère de celle des galvanisés (type2).

Le cas des matériaux ayant subi un skin-pass est une combinaison des types 2 et 4. La présence du maillage de skin-pass implique des orientations d'axe c parallèles au plan de la tôle parmi des orientations basales. On crée alors des domaines plus petits. La déformation équibiaxiale va dans un premier temps former des macles à partir des orientations basales. Puis dans un deuxième temps, après épuisement des systèmes de glissements, donner lieu à de la fissuration intragranulaire ou du clivage (le maillage est impossible pour des grains ayant leur axe c parallèle à la direction de traction, d'où apparition du clivage).

### **VI. Influence du laminage et du skin-pass :**

#### **VI.1 Effets métallurgiques du skin-pass :**

##### **VI.1.1 Résistance à la fissuration lors du pliage :**

Pour évaluer la résistance à la fissuration des aciers galvanisés, nous avons effectué des essais de pliage et mesuré plusieurs paramètres tels que le nombre, la longueur et la largeur des fissures après pliage de l'échantillon. Les microstructures et les textures ont été comparées avant et après skin-pass. Il est à noter que les échantillons présentés ici ont été skin-passés en laboratoire avec des cylindres de laminage lisses (ce qui n'est jamais le cas sur les lignes industrielles), de façon à supprimer l'effet de l'impression de rugosité et à ne conserver que l'effet du laminage. Cependant, les résultats présentés ici s'observent également dans le cas d'un skin-pass industriel.

##### **VI.1.2 Microstructure et texture.**

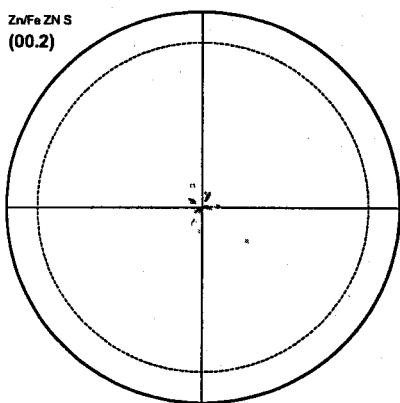
###### **a) Microstructure :**

On constate (cf. paragraphe précédent) que l'un des effets du skin-pass est de réduire la taille de domaine de l'échantillon. En effet, dans le cas des échantillons non skin-passés, un domaine est généralement constitué de plusieurs grains voisins. Or, après skin-pass et en raison de l'apparition de macles, la taille de domaine est sensiblement inférieure à la taille de grain. On



constate également une légère diminution de la taille de grain après skin-pass en raison de la recristallisation dynamique provoquée par le skin-pass.

**b) Texture :**



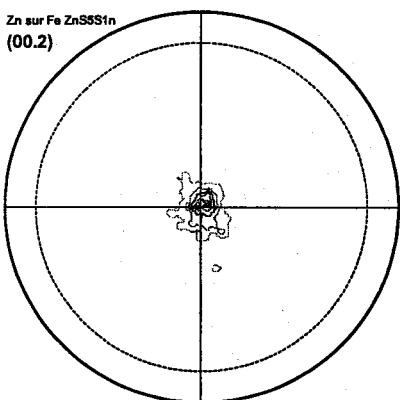
Echantillon Galvanisé Ligne 7, S 5

Sans skin-pass

$$I_{\text{mini}} = 0$$

$$I_{\text{maxi}} = 40370$$

Cet échantillon a une texture d’axe c très marquée. On remarque, de plus, que l’on a des pics de diffraction isolés, qui correspondent à des réflexions individuelles. Ceci nous montre donc que l’on a de grands domaines de même orientation.



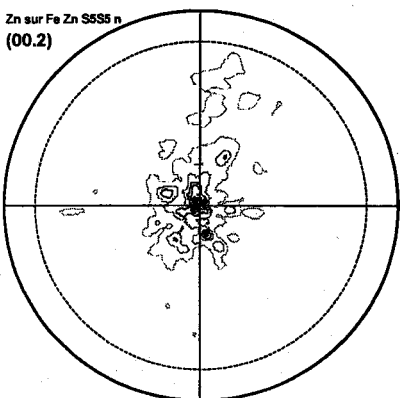
Echantillon Galvanisé Ligne 7, S5

Skin-pass sec de 1%

$$I_{\text{mini}} = 36$$

$$I_{\text{maxi}} = 8677$$

Après skin-pass, la texture d’axe c est atténuée et les pics de diffractions sont plus étalés. Ceci est dû à l’apparition de sous-joints de grains et à la recristallisation résultant du skin-pass. On constate également le passage de réflexions individuelles à des réflexions de type polycristallines ce qui montre que le skin-pass a provoqué une diminution de la taille de domaine.



Echantillon Galvanisé Ligne 7, S5

Skin-pass sec 5 %

$$I_{\text{mini}} = 95$$

$$I_{\text{maxi}} = 2012$$

Avec un taux de skin-pass plus important la texture d’axe c s’est encore considérablement atténuée. On peut, de plus, remarquer l’apparition de pics de diffraction de plus en plus désorientés. Les pics se rapprochant du bord de la figure de pôles pourraient correspondre à des macles.

Ces résultats nous confirment donc l’intérêt du skin-pass pour améliorer la résistance du revêtement à la fissuration. En effet, l’adoucissement de la texture d’axe c permet au zinc d’accommoder plus facilement les déformations par glissement et maclage. De plus, la réduction de la taille de domaine provoquée par le skin-pass entraîne une réduction du libre parcours moyen des fissures et donc une meilleure résistance à la fissuration [Lazik (1997)].

On peut toutefois remarquer une limitation dans l’utilisation du skin-pass pour améliorer la résistance à la fissuration des revêtements de zinc. En effet, à partir d’un taux de réduction élevé ( $\geq 5\%$ ), bien qu’il y ait amélioration de la résistance du zinc à la fissuration, il apparaît des conséquences néfastes sur les propriétés mécaniques du substrat d’acier, notamment sur son aptitude à la mise en forme.

### VI.2 Effets métallurgiques du laminage sur le ZnCuTi :

Le laminage du ZnCuTi permet également une amélioration des propriétés mécaniques [Racek, Tech.Ing.] par l’abaissement de la température de transition ductile-fragile. Les paramètres qui permettent de modifier cette température sont essentiellement la taille de grains, le taux d’érouissage, la teneur en impuretés, la vitesse de déformation, la nature de la contrainte [Galledou (1992)]. Selon le produit et les propriétés visées, on peut réaliser une seule ou plusieurs passes de laminage.

## VII. Modélisation du laminage :

Comme nous l’avons montré, le skin-pass joue un rôle essentiel dans les propriétés des aciers galvanisés. Il est donc important de bien comprendre les phénomènes qui interviennent au cours de ce procédé. Il est également frappant que des taux de réduction globale faibles (de l’ordre du pourcent) aient un effet important sur les textures et microstructures. On peut alors se demander si la déformation locale du zinc, matériau très ductile, n’était pas supérieure à celle de l’acier. Il nous est donc apparu très utile de développer un modèle mécanique de skin-pass.

Le travail qui est présenté ici constitue un premier pas en vue de cette modélisation. L’objectif était d’adapter un modèle existant de laminage de matériau homogène au laminage de bimatériaux : aciers galvanisés et plus généralement matériaux revêtus [Guiavarc’h (1999)].

### VII.1 Différents modèles de laminage de matériaux homogènes

#### VII.1.1 Méthode des tranches

Cette méthode bien que discutable sur le plan théorique donne de bons résultats dans le cas du laminage de produits minces ( $L_{\text{largeur}}/E_{\text{épaisseur}} > 5$ ).

Les hypothèses de cette méthode sont les suivantes [Daignières (1976)] :

a) Les axes principaux des contraintes sont les axes privilégiés de la géométrie de l’opération (Ox direction de laminage, Oy direction transverse, Oz direction normale). On

peut donc écrire dans le repère Oxyz :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix}$$

Il n’y a pas de cisaillement interne.

Il en est de même pour les déformations ("Une tranche verticale reste une tranche verticale").

b) On est en déformation plane. Il n’y a donc pas d’élargissement.

c) Le comportement est rigide plastique et régi par le critère de Von Mises.

d) Le frottement se traduit par une cission au contact produit outil (cette hypothèse est en toute rigueur incompatible avec l’hypothèse "a").

On considère pour la résolution les forces appliquées à une tranche. On intègre l’équation d’équilibre ( $\Sigma F_{\text{appliquées}}=0$ ) on en déduit, selon le choix effectué, soit  $\sigma_{xx}$  soit  $\sigma_{yy}$ . Par le critère de plasticité de Von Mises on déduit la seconde contrainte. L’hypothèse de déformation plane permet de trouver la troisième contrainte ( $\sigma_{zz}$ ). On trouve alors l’effort et le couple de laminage par intégration sur toutes les tranches:

$$F = \int_0^L \sigma_{xx} \frac{dx}{\cos \theta}$$

$$C = \int_0^L \tau \cdot R \frac{dx}{\cos \theta}$$

Cette méthode a été raffinée au fil du temps. Ainsi, la déformation élastique des cylindres de travail a été prise en compte [Jortner *et al.* (1960)], les lois élasto-plastiques ont été utilisées [Cosse et Economopoulos (1968)] et l’application aux fines épaisseurs a été réalisée [Fleck et Johnson (1987)].

Conclusion sur la méthode des tranches :

Cette méthode présente l’intérêt de la simplicité. Cependant, elle est tout à fait inadaptée pour l’étude des aciers galvanisés qui sont par nature inhomogènes dans une tranche.

### VII.1.2 Méthode de la borne supérieure (Upper Bound Method)

Cette méthode fondée sur le théorème de la borne supérieure, consiste à minimiser une fonctionnelle construite sur un champ de vitesse de forme prédéfinie et cinématiquement admissible [Hyafil *et al.* (1973)]. Cette méthode ne s’applique que dans le cas du comportement rigide plastique. De plus, cette méthode ne donne accès qu’à des grandeurs globales (forces et couples), et pas à la répartition des contraintes et des déformations. Nous avons donc écarté cette méthode qui ne nous donnait pas assez d’informations. De plus, étant donné l’importance de

l’élasticité en skin-pass, il nous fallait utiliser un modèle élasto-plastique, et non pas rigide plastique.

Remarque : On arrive à des conclusion analogues dans le cas de la méthode de la borne inférieure.

### VII.1.3 Méthode des lignes de glissement (Slip Line Field)

Pour cette méthode, on se place dans le cas d’un matériau incompressible, rigide parfaitement plastique. On trace le réseau des caractéristiques d’un système d’équations différentielles du 1<sup>er</sup> ordre [Crane et Alexander (1968)]. Cette méthode présente le double inconvénient d’être lourde et difficile à mettre en œuvre et de ne s’appliquer que dans le cas rigide plastique. Nous avons donc également renoncé à l’utiliser.

### VII.1.4 Méthode des éléments finis

Cette méthode est la plus utilisée actuellement en raison de l’augmentation exponentielle de la puissance de calcul des ordinateurs. Elle a été utilisée dans les cas suivants :

- 2D viscoplastique [Zienkiewicz (1971)]
- 3D rigide plastique [Mori et Hosakada (1989), Lee et Kobayashi (1973)]
- 2D élasto-plastique [Lin et Schen (1997), Onno et Gratacos (1994)]

Des développements ont été effectués par Cockerill Sambre et le CRM dans le cas élasto-plastique 2D appliqué au procédé de skin-pass [Wouters et al (1996)].

### VII.1.5 Méthode des lignes de courant + différences finies

Ce modèle a d’abord été développé dans le cas d’un matériau (fluide ou solide) incompressible [Hoysan et Steiff (1992)]. Il a ensuite été étendu aux matériaux élasto-plastiques avec écrouissage [Counhaye et Chefneux (1998)]. Le principe de calcul est d’intégrer les lois élasto-plastiques et les équations d’équilibre le long des lignes de courant en découplant les dérivées dans les différentes directions, par le biais de l’introduction d’inconnues supplémentaires. La compatibilité avec les inconnues de base est obtenue en ajustant de manière itérative la forme des lignes de courant et la distribution des contraintes de cisaillement au travers de l’épaisseur. Le procédé donne des solutions stationnaires comparables à celles obtenues par la méthode des éléments finis, bien que les temps d’exécution soient nettement plus courts.

La méthode permet en outre une formulation simple et naturelle des conditions limites (frottement + contact).

La déformation des cylindres est calculée à partir des fonctions d’influence de Jortner-Osterle-Zorowski [Jortner *et al* (1960)].

C’est cette méthode que nous avons décidé d’appliquer au cas du skin-pass des aciers revêtus. En effet, cette méthode permet de conserver un contact avec la physique du problème et présente

l'avantage appréciable de pouvoir être exécutée rapidement sur un simple ordinateur, contrairement aux éléments finis qui requièrent de gros moyens de calcul.

VII.2 Adaptation de la méthode des lignes de courant au skin-pass des aciers galvanisés.

VII.2.1 Modèle :

Le système d'axes utilisé est celui représenté sur la figure 27.

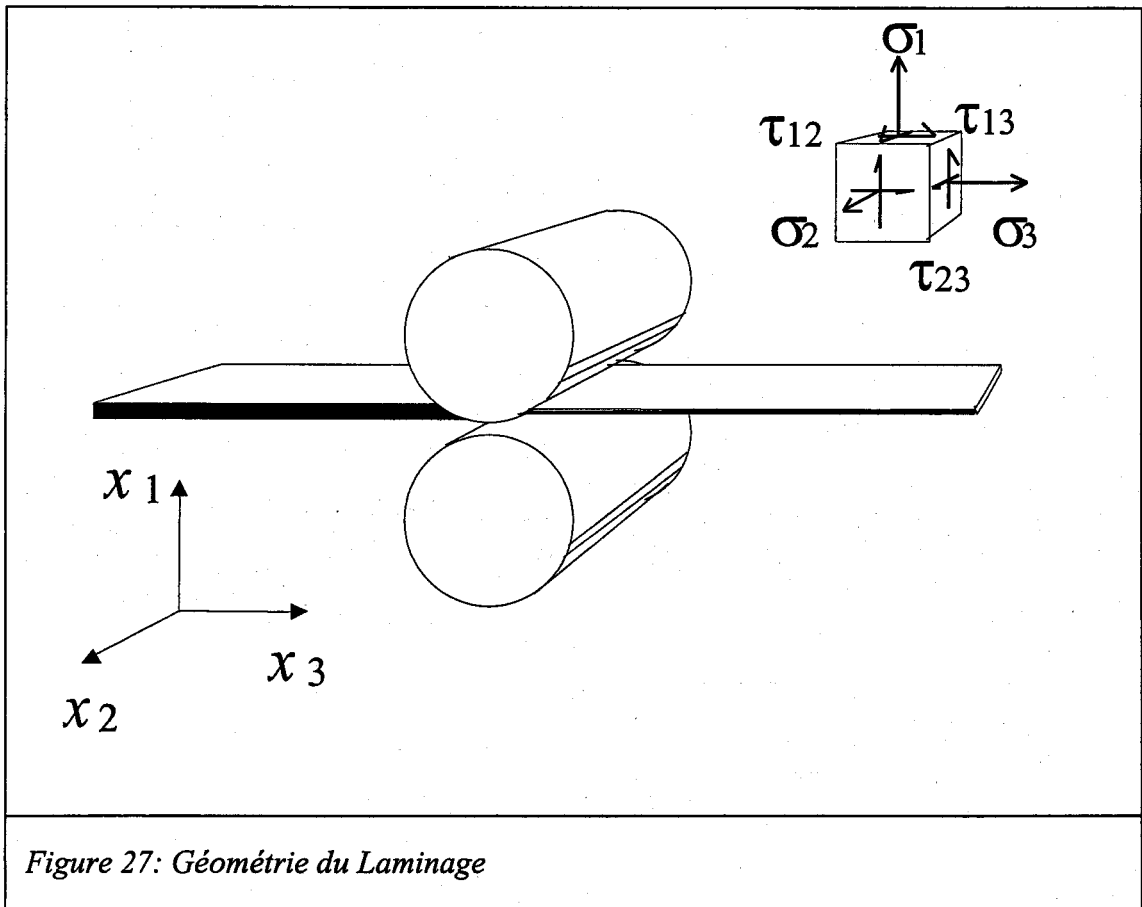


Figure 27: Géométrie du Laminage

a) Equations du modèle :

Lois de comportement :

On utilise les lois de comportement élasto-plastiques, associées au critère de Von Mises (cf. Annexes). On considère de plus qu'on est en déformation plane ( $\epsilon_2 = \epsilon_{12} = \epsilon_{23} = 0$  et  $\tau_{12} = \tau_{23} = 0$ ), on obtient donc les équations suivantes :

$$\frac{1 + \nu}{E} \begin{bmatrix} \dot{\sigma}_1 \\ \dot{\sigma}_2 \\ \dot{\sigma}_3 \\ \dot{\tau}_{13} \end{bmatrix} = \frac{1}{1 - 2\nu} \begin{bmatrix} 1 - \nu & \nu & 0 \\ \nu & \nu & 0 \\ \nu & 1 - \nu & 0 \\ 0 & 0 & 1 - 2\nu \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \dot{\epsilon}_1 \\ \dot{\epsilon}_3 \\ \dot{\epsilon}_{13} \end{bmatrix} - \frac{\dot{\kappa}}{\sigma_p} \begin{bmatrix} \sigma_1 - \frac{\sigma_2}{2} - \frac{\sigma_3}{2} \\ \sigma_2 - \frac{\sigma_1}{2} - \frac{\sigma_3}{2} \\ \sigma_3 - \frac{\sigma_1}{2} - \frac{\sigma_2}{2} \\ \frac{3}{2} \tau_{13} \end{bmatrix}$$

avec E le module de Young,  $\nu$  le coefficient de Poisson,  $\sigma_p$  la contrainte d'écoulement et  $\dot{\kappa}$  la dérivée temporelle de la déformation plastique équivalente ( $\kappa$ ).

Loi constitutive d'écrouissage :

C'est la loi qui détermine la contrainte d'écoulement  $\sigma_p$  en fonction de la déformation plastique équivalente  $\kappa$ , de sa dérivée temporelle et de la température  $T^\circ$ .

$$\sigma_p^2[\kappa, \dot{\kappa}, T^\circ] \geq \sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2 - \sigma_1 \cdot \sigma_2 - \sigma_1 \cdot \sigma_3 - \sigma_2 \cdot \sigma_3 + 3 \cdot \tau_{13}^2$$

Equations d'équilibre :

$$\frac{\partial \sigma_1}{\partial x_1} + \frac{\partial \tau_{13}}{\partial x_3} = 0 \quad \text{et} \quad \frac{\partial \sigma_3}{\partial x_3} + \frac{\partial \tau_{13}}{\partial x_1} = 0$$

Conditions aux limites :

Elles sont représentées sur la figure 28. Les deux faces du produit sont soit libres (contraintes de surface nulles), soit en contact avec le cylindre. Dans le second cas, les déplacements du produit et du cylindre doivent être compatibles et la loi de friction de Coulomb est appliquée. La zone de calcul est de plus délimitée par deux plans verticaux (en entrée et en sortie de laminoir) sur lesquels on impose un certain nombre de conditions.

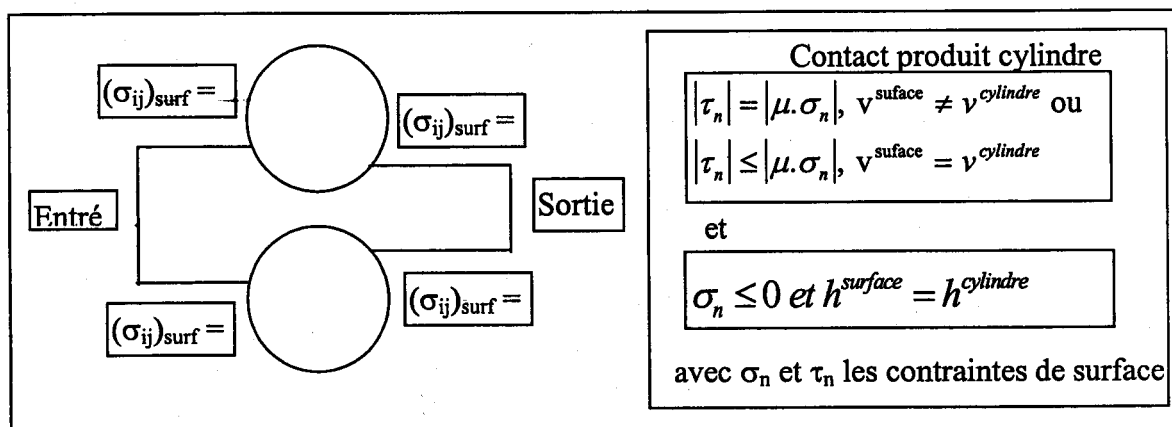


Figure 28 : Conditions aux limites.

Déformation des cylindres du laminoir :

La déformation des cylindres de laminage est prise en compte au moyen des fonctions d’influence de Jortner-Osterle-Zorowski [Jortner et al. (1960)]. Ces fonctions permettent de tenir compte de la déformation des cylindres due aux contraintes normales à leur surface ( $\sigma_n$ ), en négligeant l’effet des contraintes tangentielles.

b) Résolution des Equations.

La résolution de ces équations est fondée sur la méthode des lignes de courant. On s’intéresse à la trajectoire suivie par un point du produit. Cette trajectoire est définie par les coordonnées  $[h(x_3), x_3]$  dans le système d’axe  $x_1, x_3$ . Les différentes variables sont exprimées suivant ces coordonnées. On exprime de plus les dérivées temporelles en dérivées spatiales suivant les lignes de courant considérées :

$$\dot{f} = \frac{\partial f}{\partial t} + v_c \cdot \frac{\partial f}{\partial x_c} = v_3 \cdot \frac{\partial f}{\partial x_3} \cdot \frac{d x_c}{d x_3}$$

avec  $f = \sigma_1, \sigma_2, \sigma_3, \tau_{13}, \kappa, h$ , et  $c$  faisant référence à la ligne de courant considérée, et  $v_3$  la vitesse de l’écoulement suivant  $x_3$  (cf. figure 29)

On se place de plus dans le cas d’un écoulement stationnaire, on a donc :

$$\frac{\partial f}{\partial t} = 0$$

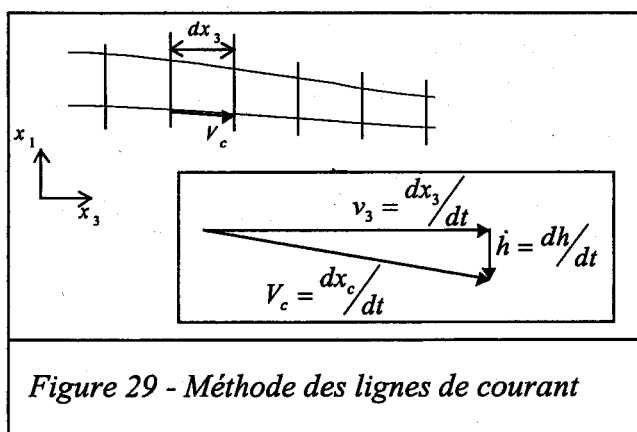
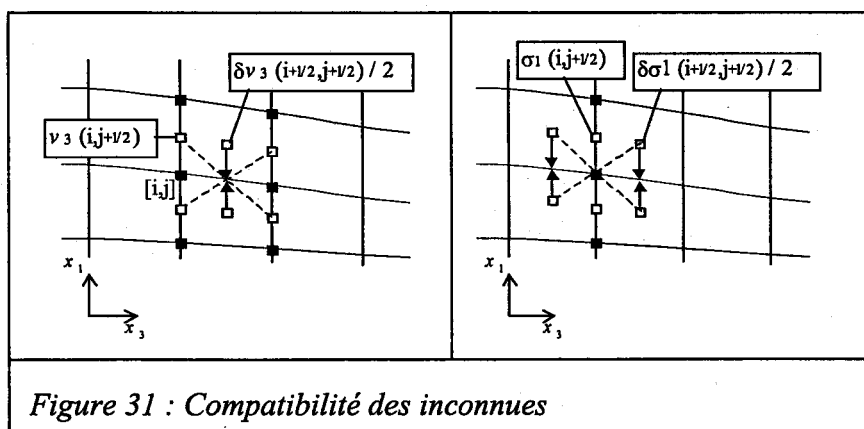
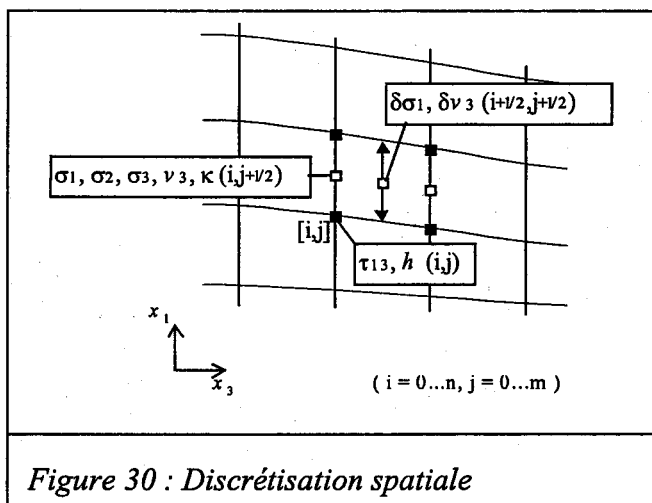


Figure 29 - Méthode des lignes de courant

c) Discrétisation des équations

La zone de calcul est divisée en  $m \cdot n$  mailles délimitées par  $m+1$  lignes de courant et  $n+1$  plans verticaux espacés régulièrement de l’intervalle  $dx_3$  (cf. Figure 30). Les différentes inconnues sont discrétisées par leur valeur soit aux intersections des lignes de courant et des plans verticaux, soit à mi-distance de deux lignes de courant et dans chacun des plans verticaux. De plus, les

inconnues supplémentaires  $\delta\sigma_1$  et  $\delta v_3$  représentant les variations de  $\sigma_1$  et  $v_3$  dans l’épaisseur d’une maille, sont introduites de façon à découpler les dérivées de ces fonctions selon  $x_1$  et  $x_3$ . Ces nouvelles inconnues s’accompagnent d’équations de compatibilité des champs  $\delta\sigma_1$  et  $\delta v_3$  avec les champs  $x_1$  et  $x_3$  (cf. figure 31).



### VII.2.2 Extension à un bimatériau : acier galvanisé

Pour étendre ce modèle au cas des aciers revêtus, nous avons, dans un premier temps, simplement adapté le modèle en imposant les propriétés mécaniques du zinc sur les lignes de courant extérieures et en réalisant une progression géométrique des écarts entre les lignes de courant consécutives, de façon à ce que l’épaisseur occupée par les deux dernières lignes de courant soit de l’ordre de grandeur de celle de la couche de zinc (voir figure 32). Le principal problème de cette extension est que l’on ne gère pas rigoureusement l’interface fer zinc par l’imposition de conditions aux limites à cette interface. Cette interface est toutefois contraintes par les conditions de continuité et par l’interaction entre les lignes de courant de l’acier et du zinc. Il est également malaisé d’obtenir exactement l’épaisseur voulue du revêtement, au moyen de la loi de progression géométrique des écarts entre les lignes de courant consécutives.



Malgré ces limitations, il s'avère que ce modèle simplifié va nous donner des résultats intéressants pour la compréhension du skin-pass.

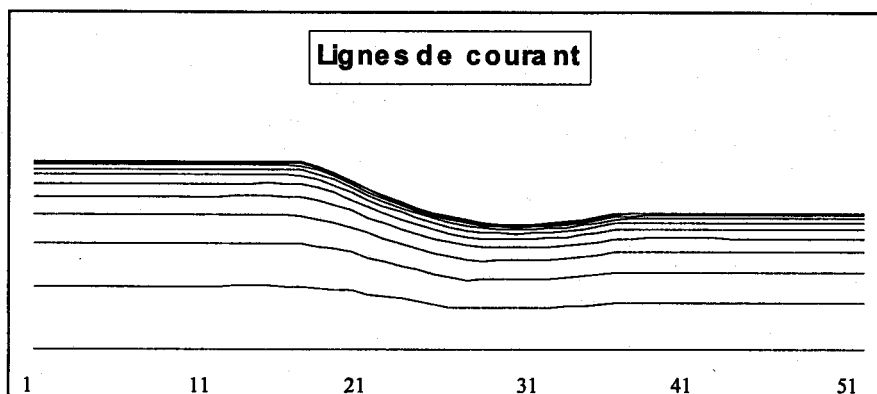


Figure 32 : progression géométrique de l'écart entre les lignes de courant.

### VII.3 Cas du laminage asymétrique :

Le modèle de laminage peut également être adapté au cas asymétrique par le réglage des diamètres de rouleaux inférieur et supérieur. Le rapport des vitesses tangentielles sera alors différent de l'unité pour une vitesse angulaire identique sur les deux rouleaux.

Différentes études sur le laminage asymétrique montrent un changement de texture [Lee et al. (2001)] et le déplacement du point neutre entre les rouleaux [Ghobrial (1989)]. Ceci a pour conséquence de déplacer le point de réversion du cisaillement vers l'extérieur des rouleaux de laminage et donc de modifier les propriétés mécaniques finales de la tôle.

### VIII. Modélisation de Taylor :

Les gradients de déformation obtenus grâce à la simulation du laminage peuvent être introduits dans un modèle de plasticité polycristalline, par exemple celui de Taylor. Ce modèle s'attache à décrire l'évolution de la texture lors de la déformation plastique connaissant les mécanismes élémentaires intra-cristallins et les interactions entre les grains mis en jeu. Le modèle de Taylor suppose que chaque grain se déforme de la même façon que l'échantillon polycristallin, c'est à dire que les déformations plastiques à l'échelle microscopique et macroscopique sont identiques sauf dans le cas du model de Taylor relaxé [Van Houtte (1988)]. Les simulations de textures seront effectuées dans cette étude avec le modèle de Taylor en mode de déformation totalement imposée ("Full Constrained") [Taylor (1938)].

Le comportement du monocristal est supposé satisfaire les hypothèses suivantes [Aernoudt et al. (1993)] :

- la déformation est homogène à l’échelle du grain,
- la déformation a lieu par glissements cristallographiques (le maclage peut également être pris en compte) suivant cinq systèmes indépendants afin de minimiser le travail microscopique (eq.2),
- le glissement sur un système suit la loi de Schmid et Boas [Schmid et al. (1950)], c’est à dire qu’il ne peut avoir lieu que si la cission résolue  $\tau$  pour ce système excède la cission critique  $\tau_c$  (Critical Resolved Shear Stress, CRSS),
- le changement d’orientation de l’élément de volume ne requiert aucun travail additionnel.

Selon ces hypothèses, le tenseur de déformation est constitué d’une déformation par glissement et par rotation rigide [BUNGE, (1997)] :

$$\varepsilon_{ij}^0 = \sum_{n=1}^N \gamma^n G_{ij}^n(g) + R_{ij} \quad (\text{dans le repère macroscopique}) \quad (1)$$

$$\text{et } \sum_{n=1}^N |\gamma^n| \tau^n = \text{Min} \quad (2)$$

$\varepsilon_0$  représente le tenseur de déformation,  $\gamma^n$  le taux de glissement relatif dans les systèmes indicés par  $n$ ,  $\tau^n$  les cissions critiques respectives,  $G^n$  le tenseur de cisaillement du système de glissement  $n$  et  $R_{ij}$  le tenseur antisymétrique (rotation rigide). Le changement d’orientation est obtenu par :

$$g_{ik}^{final} = R_{ij} \cdot g_{jk}^{initial} \quad (3)$$

Dans le cas du zinc on notera que les CRSS sont estimées en fonction des valeurs disponibles dans la littérature. (cf. § cission critique). La comparaison entre la texture expérimentale effective et celle simulée permet, par "effet rétroactif", d’améliorer le choix des systèmes de déformations et de leurs contraintes critiques correspondantes.

### **IX. Propriétés des joints de grains :**

Dans les paragraphes précédents il a été discuté des systèmes de déformation du zinc, de glissement, de maclage. Or il est bien connu que les propriétés mécaniques d’un matériau sont régies par ses caractéristiques microstructurales, sa texture, la distribution de ses joints de grains [Watanabe (1992)] et ses propriétés intrinsèques. La géométrie des joints de grains influence également les propriétés de résistance à la corrosion, d’énergie, de ségrégation, etc... [Lehockey et al. (1999), Lehockey et al. (1997), Palumbo et al. (1991), Aust et al. (1994)]. C’est pourquoi la discipline de l’ingénierie des joints de grains a été introduit par Tadao Watanabe et nommée "Grain Boundary Engineering" (GBE) [Watanabe (1984)]. Cette discipline permet de relier les propriétés des joints de grains, telles que les désorientations cristallines à travers les joints de grains, à la résistance à la fissuration, par exemple.

Les désorientations aux joints de grains dans les matériaux cubiques ont largement été étudiées et généralisées aux matériaux non cubiques [Heinz et al. (1991)].

### IX.1 Joints de grains aléatoires

Les joints de grains peuvent être divisés en deux catégories :

- les joints de faible angle de désorientation,
- les joints de grand angle de désorientation.

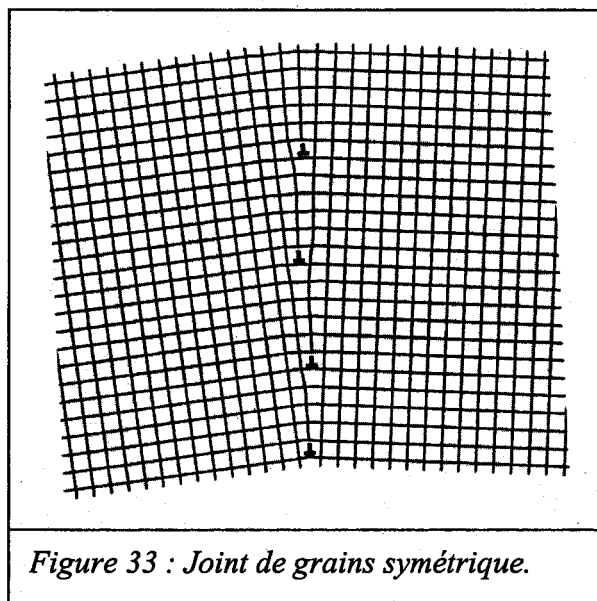
La limite entre les deux catégories reste encore floue à l'heure actuelle. En effet Brandon (1966) propose un angle de  $15^\circ$  correspondant à l'angle généralement accepté comme point de transition d'une dislocation de sous-joint de grains à un joint de grains de grand angle. Humphreys et Hatherly (1996) suggèrent quant à eux une transition allant de  $10^\circ$  à  $15^\circ$ .

Parmi les joints de grandes désorientation, il existe des joints dit "spéciaux" (ou "CSL" pour "coincident site lattice") qui ont une structure et des propriétés particulières et les joints communs que l'on appellera joints aléatoire.

### IX.2 Joints CSL :

#### IX.2.1 Faibles angles :

Les joints de grains ayant une désorientation inférieure à  $10$  ou  $15^\circ$  sont donc appelés joints à faible angle de désorientation. Ils sont représentés par un réseau de dislocation [Read and Shockley (1950)] (fig.33) dont le plus simple est le joint de grains symétrique de faible désorientation.



*Figure 33 : Joint de grains symétrique.*

L'angle de déviation maximum  $\theta$  permis de la coïncidence par rapport à la valeur théorique est donné par la relation de Brandon :

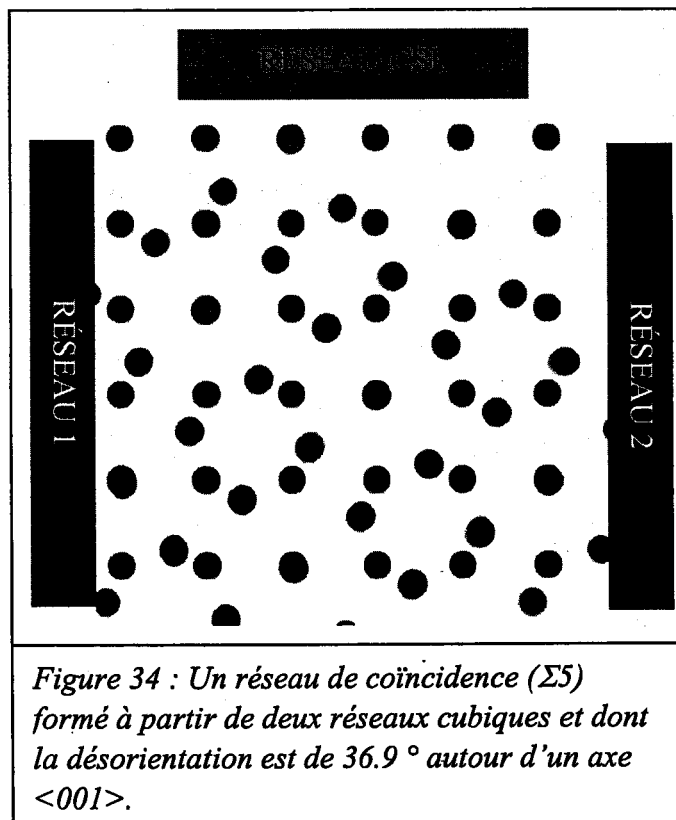
$$\theta = \theta_0 \Sigma^{-\frac{1}{2}} \quad (4)$$

où  $\theta_0$  est une constante égale à la limite de transition entre les faibles angles et les grands angles. On a alors  $\Sigma = 1$  et  $\theta = \theta_0$  pour cette catégorie de joints de grains.

### IX.2.2 CSL aux grands angles :

La relation de coïncidence CSL est une relation géométrique pour laquelle il y a création d'un "super réseau" (Fig. 34) commun aux réseaux respectifs de chaque grain.  $\Sigma$  est alors défini comme étant le rapport du volume de la maille élémentaire du super réseau à celui de la maille élémentaire du réseau initial (eq.5).

$$\Sigma = \frac{V_{\text{csl\_unit\_cell}}}{V_{\text{unit\_cell}}} \quad (5)$$



**IX.2.3 Influence de la texture sur les désorientations :**

Le spectre des désorientations dans un polycristal est déterminé à la fois par la texture et par des corrélations entre les orientations [Alexandrov et al. (1995), Morawiec et al. (1993)].

Dans le cas des revêtements de zinc, la texture va également influencer les courbes de désorientations entre grains non corrélées (Fig. 35). Ces courbes sont déterminées à partir des orientations de couples de grains choisis de façon aléatoire dans l’échantillon polycristallin. Les courbes représentent les différentes textures dont l’angle à mi hauteur de la distribution gaussienne de l’ODF (Fonction de Densité des Orientations) varie de 5° (texture fortement basale) à 30° (texture moyennement basale). Les résultats montrent que plus la texture est de type basal, plus la fréquence des désorientations présente des densités importantes aux angles faibles.

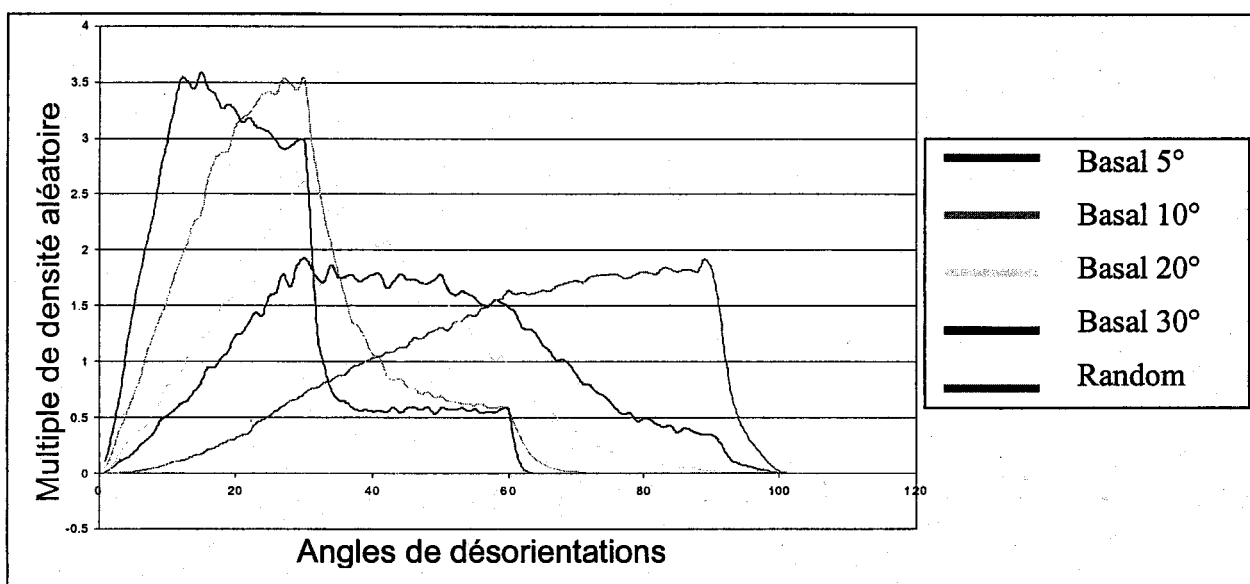


Figure 35 : Courbes de désorientation simulées non corrélées pour un revêtement de zinc en fonction du type de texture.

**IX.3 Résistance à la fissuration :**

De plus en plus, on cherche à accroître la résistance à la fissuration par l’utilisation de l’ingénierie des joints de grains. L’étude de Wang et al. (2002) montre l’influence des contraintes sur la propagation de fissures intergranulaires avec différentes textures et notamment avec des textures très marquées. La simulation indique que la distribution des joints de grains aléatoires, inclinés avec différents angles par rapport à la force de sollicitation uniaxiale, influence la propagation de la fissuration et que l’intensité de la texture du matériau est aussi un facteur important dans la propagation des fissures. Avec une texture intense, la densité de joints spéciaux augmente et entraîne la décroissance de la longueur corrélée de fissuration, ce qui correspond à une augmentation de la résistance à la fissuration des joints de grains.

L’étude de la fissuration de l’alliage Ni<sub>3</sub>Al fait ressortir que le critère de Brandon n’est pas toujours assez restrictif [Su et al. (2003)] et que ce critère doit être adapté selon l’alliage étudié.

Cette introduction générale donne une vue d’ensemble sur les alliages de zinc, que ce soit en feuillard massif ou en couche de galvanisation, sur les mécanismes de déformation et les modèles utilisés (Lignes de courant, FC Taylor, CSL). Nous allons nous focaliser dans la suite sur l’étude des relations entre les textures, microstructures et comportement en fissuration dans ces mêmes alliages de zinc. Nous mettrons d’abord en évidence les types de contraintes et de déformations que subit une tôle galvanisée lors d’un skin-pass industriel. Puis nous montrerons l’évolution des textures et des microstructures au cours du laminage asymétrique d’un feuillard de zinc massif et au cours du skin-pass d’une couche de galvanisation. Nous étudierons ensuite les relations entre le comportement en fissuration d’un revêtement de galvanisation et la distribution des joints de grains aléatoires et spéciaux dans ce revêtement. Enfin nous étudierons les perspectives de développement de l’ingénierie des joints de grains à la fois pour les substrats d’acier et pour les joints de grains du revêtement de zinc au moyen de traitements thermomécaniques sous champ magnétique intense.

**Références Bibliographiques :**

- Adams et al. (1968)** Adams K. et Vreeland T., 1968, Impurity effects on basal dislocation in zinc single crystal. *Trans. Met. Soc. AIME*, 242 :132-139.
- Aernoudt et al. (1993)** E. Aernoudt, P. Van Houtte & T. Leffers, 1993. Deformation and textures of metals at large strain. In *Plastic deformation and fracture of materials* (ed. H. Mughrabi), p. 89. *Materials science and technology. A comprehensive treatment* (ed. R. W. Cahn, P. Haasen & E. J. Kramer). Weinheim: VCH
- Alexandrov et al. (1995)** I. V. Alexandrov, A. P. Zhilyaev, V.Yu. Gertsman and A.I. Pshenichnyuk, A computer simulation study of the relation between grain boundary misorientation distribution and crystallographic texture, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, 3 (1995), pp. 149-159
- Anderson et al (1944)** A. Anderson, E.J. Boyle, P.W. Ramsey, *Trans AIME* 156, 278 (1944)
- Aust et al. (1994)** K.T. Aust, U. Erb, G. Palumbo, Interface control for resistance to intergranular cracking, *Mater Sciences and Eng.*, A176 (1994), pp. 329-334
- Beaujean (1993)** I. Beaujean, Etude du comportement mécanique de différents alliages de zinc-cuivre-titane. Influence de la composition sur la pliability, thèse de Doctorat de l'Université de Metz, 1993
- Bénard (1984)** J. Bénard, A. Michel, J. Philibert et J. Talbot, "Métallurgie générale" Masson éditeur (1984)
- Brandon (1966)** D.G. Brandon, The structure of high-angle grain boundaries, *Acta Metallurgica*, vol. 14 (1966), pp. 1479-1484
- Bunge (1993)** H.J. Bunge, *Texture Analysis in Materials Science, Mathematical Methods*, ed. Cuvillier Verlag Göttingen
- Bunge (1997)** H.J. Bunge, C. Esling, *Texture et anisotropie des matériaux, Techniques de l'ingénieur*, M605 (1997)
- Cosse et al. (1977)** Cosse et Al, (1977), ILZRO report NF6177-Zn156 cité dans [Galledou (1992)]
- Cosse et Economopoulos (1968)** P. Cosse, M. Economopoulos, *Mathematical Study of Cold Rolling*, CNRM, 17 (1968), pp.1-32
- Counhaye et Chefneux (1998)** C. Counhaye, L. Chefneux, « Application des Lois de Comportement Elasto-plastiques Discrétisées au Skin-pass et au Laminage. » *La revue de Metallurgie-CIT* Juillet Août 1998
- Crane et Alexander (1968)** Crane et Alexander, « Slip Line Field and Deformation in Hot Rolling of Strip. » *J. Inst. Metals*, 96, p.289, The Institute of Metals (1968).
- Culcasi et al. (1999)** J.D. Culcasi, P.R. Sere', C.I. Elsner, A.R. Di Sarli, Control of the growth of zinc-iron phases in the, hot-dip galvanizing process, *Surface and coatings technology*, Vol. 84 (1999), No. 8, pp.21-23
- Daignières (1976)** P. Daignière, « La Méthode des Tranches. » In « *Mise en Forme des Métaux et Alliages* », Edition du CNRS, pp.245-255 (1976).
- Dieter G.E. (1961)** George E. Dieter, D. Bacon, *Mechanical Metallurgy*, 1961, Mcgraw Hill Book Co

- Diot (1998)** M. Diot, Etude des modifications de composition d'alliages de Zinc Cuivre Titane. Conséquences sur l'aptitude au formage, Thèse Université de Metz, 1998
- Diot et al. (1999)** M. Diot, M.J. Philippe, J. Wegria, C. Esling, Addition elements and texture gradient in rolled zinc alloys, Scripta Materialia, Vol. 40 (1999), No. 11, pp. 1295-1303
- Dreulle (1983)** P. Dreulle, Techniques de l'ingénieur, Propriété des alliages de zinc, M458 1 (1983)
- Encyclopaedia Universalis, 1989** Encyclopaedia Universalis. Paris Encyclopaedia Universalis France 1989
- Fasoyinu et al. (1990)** F.A. Fasoyinu, F. Weinberg, Spangle Formation in Galvanized Sheet Steel Coatings. Metallurgical Transactions B, vol. 21B (1990) 6, pp 549-558
- Fleck et Johnson (1987)** A. Fleck et K.L. Johnson, Towards a New Theory of Cold Rolling Thin Foil, Int. J. Mech. Sci. 29 (1987).
- Foct et al. (1993)** J. Foct, G. Reumont, P. Perrot, The morphology of zinc coatings. The physical metallurgy of zinc coated steel, A.R. Marder ed., The Mineral, Metals & Material Society, 1993, pp. 1-9
- Fundenberger et al. (1997)** J.J. Fundenberger, M.J. Philippe, F. Wagner et C. Esling, Modelling and prediction of mechanical properties for materials with hexagonal symmetry (zinc, titanium and zirconium alloys), Acta Mater., Vol. 45 (1997), pp. 4041-4055
- Gaignard (1999).** S. Gaignard, J. Wegria, M. Dubois, C. Esling, « Optimisation of Galvanisation Process Parameters to Improve the Cracking Resistance in Zinc Coatings. » Icotom 12 (1999).
- Galledou (1992)** Y. Galledou, Contribution à l'étude de la pliability des alliages zinc-cuivre-titane à basse température, thèse de Doctorat de l'Université de Metz, 1992
- Gebhardt (1941)** E. Gebhardt, Z. für Metallkunde, Vol. 33, p. 355 (1941)
- Gervais, Barnhurst and Loong, (1985)** E. Gervais, R.J. Barnhurst and C.A. Loong, An analysis of selected properties of ZA alloys, J. Metals, Vol.37, No. 11, pp. 43-47 (1985)
- Ghobrial (1989)** M.I. Ghobrial, A photoelastic investigation on the contact stresses developed in rolls during asymmetrical flat rolling, International Journal of Mechanical Sciences, Vol. 31, Issue 10, 1989, pages 751-764
- Guiavarc'h (1999)** M. Guiavarc'h, Rapport de DEA, Université de Metz (1999).
- Heine et Zwicker (1962)** Heine et Zwicker (1962), Z. für Metallkunde 53, 380
- Heinz et Neumann (1991)** A. Heinz and P. Neumann, Representation of orientation and disorientation data for cubic, hexagonal, tetragonal and orthorhombic crystals, Acta Cryst., A47 (1991), pp. 780-789
- Hoysan et Steiff (1992)** S.F. Hoysan, P.S. Steiff, « A Streamline-based Method for Analysing Steady State Metal Forming Process. » Int. J. of Mech. Sc., Vol34, Num 3, pp.211-221 (1992)
- Humphreys et Hatherly (1996)** F.J. Humphreys and M. Hatherly, Recrystallization and related annealing phenomena, ed. Pergamon, 1996



- Hyafil et al (1973)** Hyafil, Felder, Baqué, d’Escatha, « Mise en Forme des Métaux, Calculs par la Plasticité. » 2t. ,p.711, Dunod, Paris (1973).
- Jaffrey (1980)** D. Jaffrey, J.D. Browne, T.J. Howard, The cracking of zinc spangles on hot dipped galvanized steel, *Met. Trans. B*, vol. 11B (1980), No. 12, pp. 631-635
- Jortner et al. (1960)** D. Jortner, J.F. Osterle, C.F. Zorowski, « An Analysis of Cold Strip Rolling. » *Int. J. Mech. Sci.* 2 (1960).
- Lazik (1997)** S. Lazik, Etude microstructurale des revêtement de zinc, Thèse Université de Metz, 1997
- Le Bon (1994)** A. Le Bon, P. Hug, *Le livre de l’acier*, chap. 59, pp 1282 - 1325 (1994).
- Lee et al. (2001)** S.H. Lee, D.N. Lee, Analysis of deformation textures of asymmetrically rolled steel sheets, *Int. J. of Mechanical Sciences*, vol. 43 (2001), p.1997-2015
- Lee et Kobayashi (1973)** Lee et Kobayashi, « New Solutions to Rigid Plastic Deformation Problems Using a Matrix Method. » *Trans. ASME, J. Eng. Ind.* 95, p.865 (1973).
- Lehockey et al. (1997)** E.M. Lehockey, G. Palumbo, P. Lin and A.M. Brennenstuhl, On the relationship between grain boundary character distribution and intergranular corrosion, *Scripta Mater.*, vol. 36 (1997), No.10,pp.1211-1218
- Lehockey et al. (1999)** E.M. Lehockey, D. Limoges, G. Palumbo, J. Sklarchuck, K. Tomantschger, A. Vincze, On improving the corrosion and growth resistance of positive Pb-acid battery grids by grain boundary engineering, *Journal of Power Sources* 78 (1999), pp. 79-83
- Lhuire (1984)** E. Lhuire, Contribution à l’étude de la ductilité des fils de tungstène fritté, Thèse de doctorat de l’INPL Université de Nancy, 1984
- Lin et schen (1997)** Lin et Schen, « A Rolling Process Two Dimensional Finite Element Model Analysis. » *Finite Elements in Analysis and Design*, pp.143-160, (1997).
- Mackowiack and Short (1979)** J. Mackowiak and N.R. Short, Metallurgy of galvanized coatings, *Int. Metals Reviews*, No.1, pp. 3-21 (1979)
- Mahajan et al. (1973)** S. Mahajan and D.F. Williams, Deformation twinning in metals and alloys, *Intern. Metallurgical Rev.*, 18, n°173, p. 43 (1973)
- Marder (1990)** A.R. Marder, Microstructural characterization of zinc coatings, Zinc-Based steel coating systems: metallurgy and performance, G. Krauss and D.K. Matlock eds., *The Minerals, Metals & Materials Society*, 1990, pp. 55-82
- Marder (2000)** A.R. Marder, The metallurgy of zinc coated steel, *Progress in Materials Sciences*, 45 (2000), pp. 191-271
- Mei (1993)** Z. Mei, Jr.J.W. Morris, « Cracking of Textured Zinc Coating During Forming Process. » In *The Physical Metallurgy of Zinc Coated Steel*, A.R.Marder ed., TMS, Warrendale, PA, pp.11-20 (1993).
- Mellab (1992)** F. E. Mellab, Contribution à l’étude des textures de déformation des alliages hexagonaux, Thèse de doctorat de l’Université de Metz (1992)
- Messien et al. (1981)** P. Messien, J. Wegria, A. Piccinin and L. Habraken, Rolling texture and bendability of an industrial zinc-copper-titanium alloy, *Proc. ICOTOM 6*, p. 1001 (1981)

- Mikulowski (1996)** B. Mikulowski, The effect of the prestrain temperature on the hardening of Zn and ZnGa Monocrystals on the (0001)<1120> system. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 157 :287-92 (1996)
- Morawiec et al. (1993)** A. Morawiec, J.A. Szpunar and D.C. Hinz, Texture influence on the frequency of occurrence of CSL-Boundaries in polycrystalline materials, *Acta Metall. Mater.*, Vol. 41 (1993), No. 10, pp. 2825-2832
- Mori et Hosakada (1989)** Mori et Hosakada, « Finite Element Simulation of 3D Deformation in Shape Rolling. » in *proc Numform 89*, ed par E. Thomson et coll. Balkeme (1989).
- Mueller et Haessner (1981a)** H. Mueller and F. Haessner, Hall-Petch analysis of zinc-samples with Texture, *Proc. ICOTOM 6* (1981)
- Mueller et Haessner (1981b)** H. Mueller et F. Haessner, Influence of grain size and texture on the flow stress of zinc, *Scripta Met.*, Vol.15 (1981), pp. 487-492
- Onno et Gratacos (1994)** F. Onno, P. Gratacos, Elastoplastic Models for Cold Rolling, Application to Temper Rolling, *Revue de Métallurgie, Cahier d'Info. Tech.* 91(6), pp.931-936, (1994)
- Palumbo et al. (1991)** G. Palumbo, P.J. King, K.T. Aust, U. Erb and P.C. Lichtenberger, Grain Boundary Design and Control for Intergranular Stress-Corrosion Resistance, *Scripta Met. And Mater.*, 25 (1991), pp. 1775-1780
- Partridge (1967)** Partridge P.G., The cristallography and deformation modes of hexagonal close-packed metals, *Metallurgical Reviews, Review 118*, pp. 169-194 (1967)
- Philippe et al. (1994a)** M.J. Philippe, I. Beaujean, E. Bouzy, M. Diot, J. Wegria, C. Esling, *Proc. ICOTOM 10*, p. 1671 (1994)
- Philippe et al. (1994b)** M.J. Philippe, F. Wagner, F.E. Mellab, C. Esling, J. Wegria, *Acta Met. Mater.* 42, vol. 1, p. 239 (1994)
- Piccinin et al. (1975)** A. Piccinin, J. Wegria, R. Racek, Rapport interne CRM NF5/75-Zn143 (1975) cité dans [Diot (1998)]
- Piccinin et al. (1976)** A. Piccinin, J. Wegria, Rapport interne CRM NF6/76-Zn149 (1976) cité dans [Diot (1998)]
- Porter, Zinc Handbook** F. Porter, *Zinc Handbook, Properties, Processing, and use in design*, ed. DEKKER (1991)
- Racek (1995)** R. Racek, *Mise en forme du zinc et de ses alliages, Techniques de l'ingénieur*, M670 (1995)
- Rangarajan (1989)** V.Rangarajan, N.M. Giallourakis, D.K. Matlock, G. Krauss, The effect of texture and microstructure on deformation of zinc coatings, *J. Mater. Shaping Technol.*, No4, 6, pp. 217-227, 1989
- Read an Shockley (1950)** W. T. Read an W. Shockley, *Dislocation Models of Grain Boundaries*, *Physical Review*, Vol. 78 (1950), No. 3, pp.275-289
- Rennhack et Conard (1966)** E.H. Rennhack, G.P. Conard, *Trans. Metall. Soc. AIME* 236, 941 (1966a)
- Schmid et al. (1950)** E. Schmid and W. Boas, *Plasticity of Crystals*, 1950 : London (F.A. Hughes)
- Sémoroz et al. (2002)** A.Sémoroz, L. Strezov, M. Rappaz, Orientation Domains and Texture in Hot-Dipped Galvanized Coatings, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33 (2002), pp. 2695-2701

- Stahl et al. (1984)** D. Stahl and H. Margolin, Pyramidal flow stress of single crystal zinc, Acta Metallurgica Volume 32, Issue 10, October 1984, Pages 1817-1823
- Su et al. (2003)** J.-Q. Su, M. Demura, T. Hirano, Mechanical behaviour of Sigma3 boundaries in Ni3Al, Acta Materialia, 51 (2003), pp. 2505-2515
- Taylor (1938)** G.I. Taylor, J. Inst. Metals, 62 (1938), p.307
- Van Houtte (1988)** P. Van Houtte, A comprehensive mathematical formulation of an extended Taylor-Bishop-Hill model featuring relaxed constraints, the Renouard-Winterberger theory and a strain rate sensitivity model, Texture and Microstructures, vol. 8 et 9, pp. 313-350 (1988)
- Vincent, Rapport interne (2003)** G. Vincent, Comparaison des textures et des microstructures au vu des essais de traction et Marciniak, Rapport interne (2003)
- Von Mises (1928)** Von Mises, Mechanik der plastischen Formänderung von Kristallen, Z. Angew. Math. Mech. (D), 8, p.161-85 (1928)
- Wall (1984)** N.J. Wall, J.A. Spittle, R.D. Jones, The deformation characteristics of zinc coatings on hot-dip galvanized mild steel strip, Paper 14th In. Conf. Hot Dip Galvanizing, Munich (1984)
- Wang et al. (2002)** G. Wang, L. Zuo, C. Esling, Computer simulation on the tendency of intergranular fracture in textured polycrystalline materials, Philosophical Magazine A, 2002, vol. 82, No. 12, pp. 2499-2510
- Watanabe (1984)** T.Watanabe, An approach to Grain Boundary Design for Strong and Ductile Polycrystals, Res Mechanica, 11 (1984), p.47
- Watanabe (1992)** T.Watanabe, The importance of grain boundary character distribution (GBCD) to recrystallization, grain growth and texture, Scripta Met. And Mater., 27 (1992), p.1497-1502
- Wégria (1984)** J. Wégria, Etude de la plasticité des alliages zinc cuivre titane application à l'amélioration de leur aptitude au pliage, thèse, Université de Lille, 1984
- Wegria et al. (1979)** J. Wegria, A. Piccini, R. Racek, Rapport interne CRM NF11/79-Zn188 (1979) cité dans [Diot (1998)]
- Wegria et Piccini (1981)** J. Wegria, A. Piccini, 2nd RISO International Symposium on Metallurgy on Materials Science, p. 229 (1981)
- Willis (1995)** D.J. Willis, A. De Liseo, An intergranular corrosion in continuously galvanized steel, Galvatech 95 Conf. Proceed., pp. 145-153 (1995)
- Wouters et al. (1996)** Wouters, Houyoux, Defourny, Bouquegneau, Renault, (1996). « Modélisation du Skin-pass. » La Revue de Métallurgie, ATS
- Zienkiewicz (1971)** Zienkiewicz, « The Finite Element Method in Engineering Science. » Mac Graw-Hill, London (1971).

## **Chapitre 2 : Modélisation des déformations et contraintes lors du skin-pass industriel d'une tôle galvanisée**

### **Introduction**

L'amélioration des revêtements galvanisés consiste, notamment, à réduire la fissuration intergranulaire et intragranulaire. Le paramètre intervenant dans la réduction de la fissuration est sans nul doute la taille des grains. Afin de parvenir à une taille idéale correspondant à un bon comportement en fissuration, l'industrie du zinc commence à retirer le plomb et l'antimoine contenus dans les bains de zinc en fusion. C'est également un pas en avant vers la protection de l'environnement.

Un autre moyen d'arriver à de faibles tailles de grains est de procéder au laminage de la tôle galvanisée par le procédé de skin-pass. Les textures et les microstructures s'en trouveront complètement modifiées. En effet lors du skin-pass la tôle subit une compression sous les rouleaux du laminoir et s'allonge dans la direction de laminage (DL), ce qui a pour effet de macler le revêtement de zinc et de créer des petits grains. Des orientations différentes de la texture de fibre de solidification du revêtement de zinc se créent alors. La désorientation des macles est de  $86^\circ$  environ par rapport à la matrice initiale. A priori, le maclage des revêtements n'est pas considéré comme un facteur améliorant la résistance à la fissuration puisque le système de glissement facile ne pourra plus s'activer dans les macles, en raison de l'orientation de leur réseau. Les axes c du réseau cristallin après maclage se trouvent en général dans le plan de la tôle, ce qui risque de faciliter le clivage plutôt que le glissement basal. En réalité, et c'est l'objet de ce chapitre, le skin-pass a un effet bénéfique sur la résistance à la fissuration. La comparaison d'échantillons non skin-passés et skin-passés après un essai de pliage à  $180^\circ$  permet de montrer que l'échantillon skin-passé présente moins de fissures après déformation par pliage.

La mise en oeuvre d'un modèle statique, basé sur la méthode des "lignes de courant" permet de mettre en évidence qu'en sortie des rouleaux de laminage, la couche de zinc maintient des contraintes internes de compression dans le plan de la tôle.

**Modeling of the strains and stresses during the industrial skin-pass of a galvanized steel sheet**

The improvement of the galvanized coatings consists in reducing intergranular and intragranular cracking. The parameter intervening in the reduction of cracking is without doubt the grain size. In order to achieve an ideal size corresponding to a good cracking behavior, the zinc industry starts to withdraw lead and antimony from the molten zinc baths. It is also a step ahead towards environmental protection.

Another means of grain refinement is to carry out a rolling process called skin-pass on the coated sheet. Textures and microstructures will be noticeably modified. Indeed during the skin-pass the sheet undergoes compression under the rollers of the rolling mill and lengthens in the rolling direction (RD), which causes twinning in the zinc coating and creates small grains. New orientations differing from the traditional solidification fiber texture of the zinc coating are then created. The misorientation of the twins to the matrix corresponds to approximately  $86^\circ$ . A priori, twinning in the zinc coating is not regarded as a factor improving the cracking resistance since the easy slip system will not be able to be activated any more in the twins, because of their new lattice orientation. The c axes of the twins generally lie in the sheet plane, which is likely to facilitate cleavage rather than basal slip. In fact, and it is the object of this chapter, the skin-pass has a beneficial effect on the cracking resistance. The comparison of non skin-passed and skin-passed samples after a  $180^\circ$  bending test shows that the skin-passed samples presents less cracks after the bending tests.

The implementation of a static model, based on the flow line method makes it possible to evidence that at the exit of the rollers, the layer of zinc maintains internal compression stresses in the sheet plane.

## **SIMULATING THE TEMPER ROLLING OF GALVANIZED STEEL**

G. VINCENT\*, C. COUNHAYE\*\* and C. ESLING\*

\*LETAM UMR 7078, Université de Metz, Ile du Saulcy, F57012 METZ Cedex 1

\*\* COCKERILL SAMBRE, Quai du Halage10, B-4400 FLEMALLE

### **Abstract**

This work deals with early results obtained in numerical simulation of the skin-pass of zinc coated steel sheets.

First, the streamline model and its adaptation to the case of the temper rolling of coated steel sheets are detailed.

Second, the influence of various parameters of the rolling process on the strain and stress fields in the sheet is numerically calculated.

### **Introduction**

The skin pass is an important step of the galvanization process on industrial lines. It consists in a cold rolling ( $T < 50^{\circ}\text{C}$ ) with a reduction ratio of a few percent. Most commonly it is used to improve flatness, avoid vermiculation and impress rugosity to the sheet.

It has been shown recently that the skin pass also improves the cracking resistance of the zinc layer modifying its texture and microstructure [1,2].

Considering beneficial effects of the skin pass it seems worth to have a better comprehension of this process by modeling it.

### **Experimental assessment of the skin pass effects**

#### **Cracking resistance of the zinc layer:**

To evaluate the cracking resistance of the zinc layer we made a bending test on two sets of galvanized samples non-skin-passed and skin-passed.

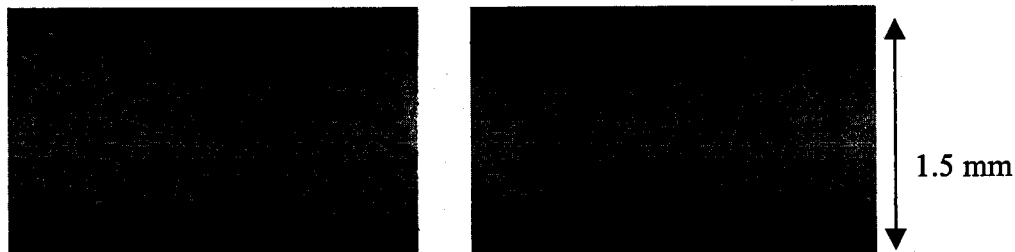


Fig. 1: a) Non-skin-passed sample; b) Skin-passed sample (5% reduction ratio)

The optical micrographs in Fig. 1 clearly show that the skin pass improves the cracking resistance of the zinc layer.

Effect on the microstructure and the crystallographic texture

The grain size of the zinc layer has been determined by optical microscopy (see Fig. 2a and 2b). The domain size is the mean size of the crystallographic coherent areas of the sample. It can be larger than the grain size when several adjacent grains have small misorientations or smaller, for example when the grains contain twinned zones. A reduction in the domain size improves the cracking resistance of the coating by restricting the mean free path of the possible propagation of the cracks [1].

One of the skin pass effects is to reduce the domain size of the sample due to twinning, which increases cracking resistance of the zinc coating

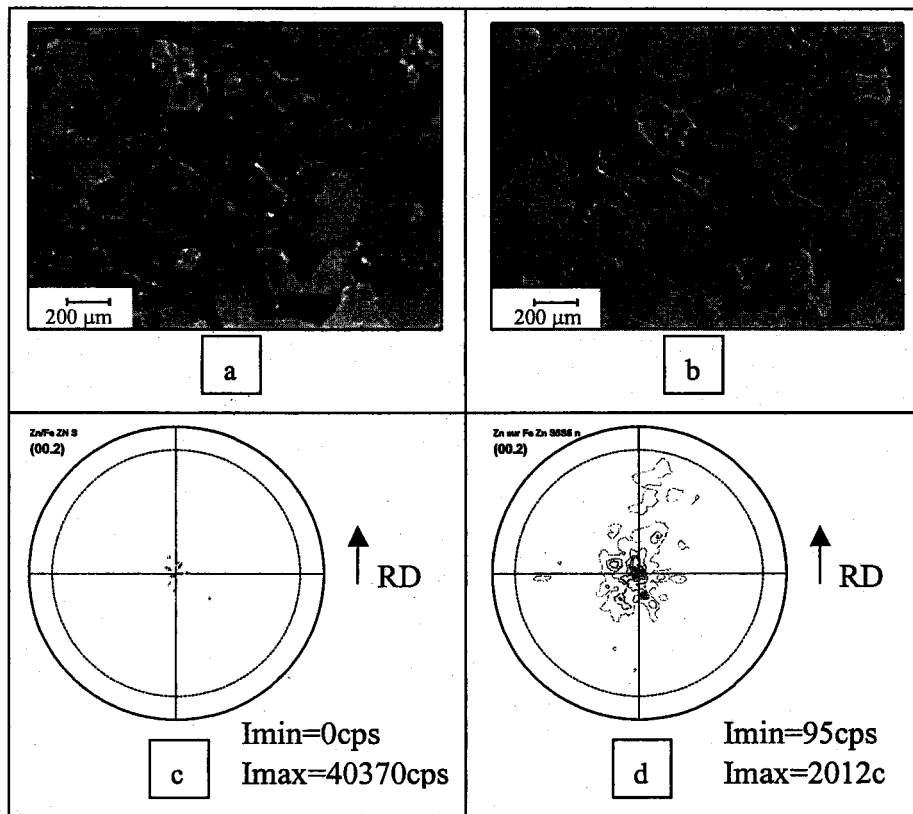


Fig. 2: a) Non-skin-passed sample, optical micrograph in polarized light, grain size in the range 50 to 200  $\mu\text{m}$ , domain size in the range 100 to 500  $\mu\text{m}$ ; b) Skin-passed sample (5% reduction ratio) skin passed, optical micrograph in polarized light, grain size in the range 50 to 200  $\mu\text{m}$ , with a reduction of the domain size; c) (00.2) pole figure of the non-skin-passed sample; d) (00.2) pole figure of the skin-passed sample (5% reduction ratio).

The pole figure show that the sharpness of the c-axis texture component decreases after skin pass. In addition, a reduction of the domain size can be deduced from the passage of individual to polycrystalline type diffraction patterns.

### Modeling

It is striking that a process with such small reduction ratios has a marked effect on the coating. So it seems interesting to not only consider the global reduction ratio but also to analyze the local distribution of stresses and strains. This lead us to develop a mechanical model for temper rolling of galvanized steel.

Our model is an extension of the model developed by C. Counhaye and L. Chefneux for homogenous materials [3]. It is based on the streamline method coupled with finite difference. The zinc mechanical properties are imposed on the external flow lines. The distances between two consecutive flow lines are in geometrical progression. This is necessary because of the difference of thickness between the steel (about 1 mm) and the zinc coating (about 10  $\mu\text{m}$ ).

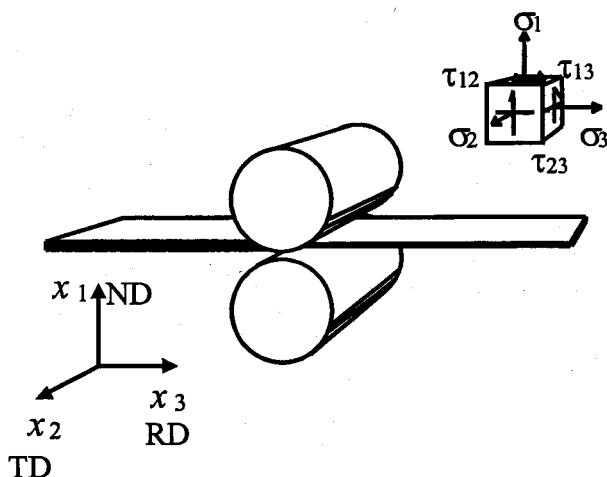


Figure 3 : Rolling geometry.

### Equations of the model:

- Elasto-plastic constitutive equations

$$\frac{1 + \nu}{E} \begin{bmatrix} \dot{\sigma}_1 \\ \dot{\sigma}_2 \\ \dot{\sigma}_3 \\ \dot{\tau}_{13} \end{bmatrix} = \frac{1}{1 - 2\nu} \begin{bmatrix} 1 - \nu & \nu & 0 \\ \nu & \nu & 0 \\ \nu & 1 - \nu & 0 \\ 0 & 0 & 1 - 2\nu \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \dot{\epsilon}_1 \\ \dot{\epsilon}_3 \\ \dot{\epsilon}_{13} \end{bmatrix} - \frac{\kappa}{\sigma_p} \begin{bmatrix} \sigma_1 - \frac{\sigma_2}{2} - \frac{\sigma_3}{2} \\ \sigma_2 - \frac{\sigma_1}{2} - \frac{\sigma_3}{2} \\ \sigma_3 - \frac{\sigma_1}{2} - \frac{\sigma_2}{2} \\ \frac{3}{2} \cdot \tau_{13} \end{bmatrix}$$

The elasto plastic equations associated with Von Mises criterion are used in the case of a plane strain.



- Constitutive hardening law :

$$\sigma_p^2[\kappa, \dot{\kappa}, T^\circ] \geq \sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2 - \sigma_1 \cdot \sigma_2 - \sigma_1 \cdot \sigma_3 - \sigma_2 \cdot \sigma_3 + 3 \cdot \tau_{13}^2$$

This law describes the flow stress  $\sigma_p$  as a function of the equivalent plastic strain  $\kappa$ , its time derivative and the temperature  $T^\circ$ .

- Equilibrium equations :

$$\frac{\partial \sigma_1}{\partial x_1} + \frac{\partial \tau_{13}}{\partial x_3} = 0 \quad \text{and} \quad \frac{\partial \sigma_3}{\partial x_3} + \frac{\partial \tau_{13}}{\partial x_1} = 0$$

- Boundary conditions :

The surface of the product is either free (no normal stress on the surface), or in contact with the roll. In the second case, the product and roll displacements must be compatible and the friction is supposed to be of Coulomb type. Moreover, the domain considered for calculation is delimited by two vertical planes on which boundary conditions are imposed.

- Deformation of the rolling cylinders:

The deformation of the rolls is calculated by means of the Jortner-Osterle-Zorowski influence functions [4].

Despite the simplifications this first attempt to model skin pass yields informative results.

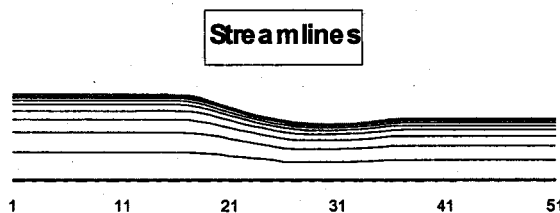


Figure 4 : Geometrical progression of the gap between two consecutive flow lines.

### First numerical results: influence of various parameters

#### Zinc layer influence comparison with the skin pass of a steel sheet

To assess the influence of the coating we ran the simulation for a steel sheet and a galvanized steel sheet with the same friction coefficient ( $\mu=0.25$ ). This gives the effect of the mechanical properties of the zinc layer without the specific effect of friction

We can see that the  $\sigma_{RD}$  stress are stronger in the zinc layer than in the steel (cf. figure). In fact the zinc ductility is stronger than that of steel, so it should flow easier along RD than steel. Nevertheless, because of it is bound to the substrate it is submitted to compressive stresses along RD. This certainly improves the cracking resistance of the coating.

Concerning the strain, we can notice that the deformation along ND is larger for the coating than for the substrate.

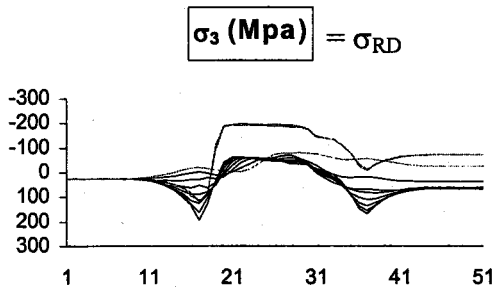


Figure 6 :  $\sigma_3$  in galvanized steel sheet

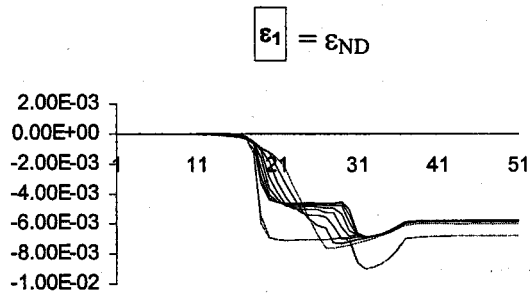


Figure 7 :  $\epsilon_1$  in a galvanized steel

Friction coefficient effect, influence of lubrication

An important parameter in the skin pass process is the lubrication of the rolls and thus  $\mu$ , the friction coefficient between the product and the rolls. In our numerical simulations  $\mu$  has been varied in the range from 0.05 to 0.25

It appears that the friction coefficient has no marked effect on  $\sigma_{DN}$ . Nevertheless the  $\sigma_{RD}$  stresses increase considerably with the friction coefficient. In fact, due to the geometry of the process the principal friction effort components are along RD.

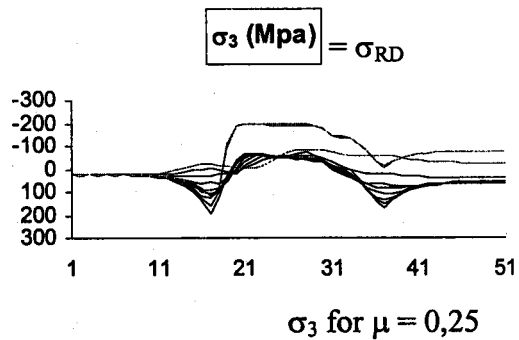
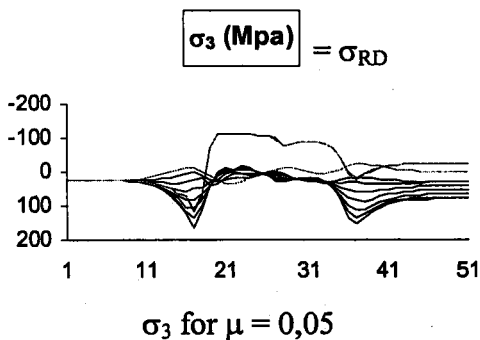


Figure 8 : Influence of the friction coefficient  $\mu$  on  $\sigma_3$

Concerning the deformations, the main difference between the two-presented cases appears for  $\varepsilon_{13}$  ( $\varepsilon_{(ND,RD)}$ ), the shear strain (cf. figure). The strain was about ten times larger for a friction coefficient of 0.25 than for 0.05.

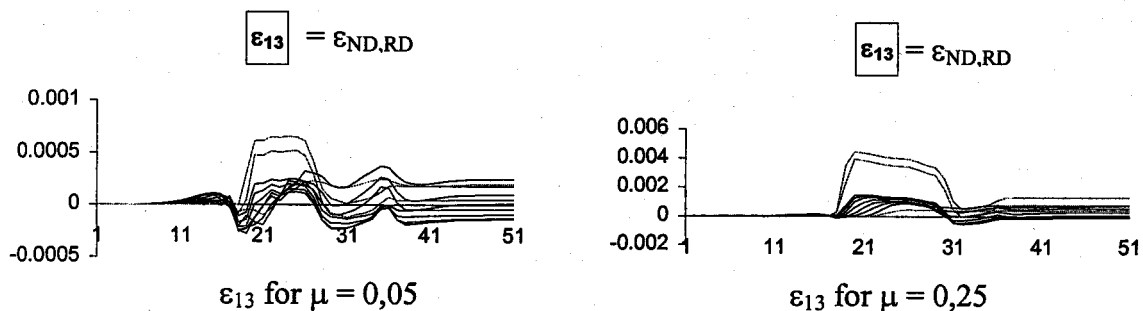


Figure 9 : Influence of the friction coefficient  $\mu$  on  $\varepsilon_{13}$

### Conclusion:

This skin pass model showed that the zinc layer is submitted to a larger deformation than the steel during the process. It also showed that the stress along ND and RD as well as the shear stresses are very strong in the zinc as compared to steel. This could explain marked effects of the skin pass despite of relatively low global deformation ratios (reduction ration in the order of 2%). Despite of the simplifications this first attempt to model skin pass yields results that are helpful to understand some mechanical effects of the process.

### References

- [1] S. Lazik, Thesis, Univ. of Metz, France (1991).
- [2] S. Gaignard, J. Wegria, M. Dubois, C. Esling, *Proc. Icotom 12* (1999).
- [3] C. Counhaye, L. Chefneux, *J. Inst. Materials*, 96, 1968, p289, The Institute of Materials (1998) and *La Revue de Métallurgie*, pp. 929-938 (October 1998)
- [4] D. Jortner, J.F. Osterle, C.F. Zorowski, *Int. J. Mech. Sci.* 2 (1960).

## **Chapitre 3 : Evolution de texture au laminage asymétrique**

### **Introduction**

Après l'étude du skin-pass voyons maintenant quel est l'effet d'un autre type de laminage, le laminage asymétrique, sur la texture et la microstructure de la couche de galvanisation.

Le laminage asymétrique est de plus en plus étudié actuellement car il permet de diminuer les efforts de laminage et donc la consommation énergétique.

Ce laminage, bien qu'il ne change pas fondamentalement les microstructures du revêtement de zinc, modifie les textures tant du point de vue intensité que du point de vue position des pics sur les figures de pôles.

Dans ce chapitre, l'évolution des textures est étudiée pour un laminage asymétrique à la fois sur du zinc massif (ZnCuTi) et sur une couche de zinc galvanisé.

Le modèle des "lignes de courant" a été retenu et adapté au laminage asymétrique. Il permet de réaliser des simulations aussi précises mais plus rapides qu'avec un modèle d'éléments finis.

Ces études qui sont très similaires entre elles, révéleront de grandes différences dans les évolutions de texture du fait que les taux de réductions sont nettement différents. Dans le cas du laminage asymétrique du zinc-cuivre-titane, des réductions de 20% par passe ont été effectuées pour arriver à un taux de réduction global de 50% (en 3 passes de laminage), alors que le laminage asymétrique du galvanisé ne représente qu'une réduction de 2% environ. Dans le but de mieux cerner les systèmes de glissement activés, les textures obtenues sont comparées aux textures simulées. La modélisation utilisée pour faire la simulation de texture est un modèle de Taylor en mode de déformation complètement imposée (Full Constrained FC Taylor).

La texture obtenue après laminage asymétrique du zinc massif donne un déplacement du pic des intensités des axe c de la figure de pôles (00.2) différent de celui observé après laminage symétrique.

Les textures des revêtements galvanisés présentent un étalement du pic central de la figure de pôle (00.2) après skin-pass. Bien que les textures après skin-pass ne varient pas beaucoup en raison du faible taux de réduction, la composante de maillage est plus marquée dans le skin-pass asymétrique.

### **Texture evolution during asymmetrical rolling**

After the study of the skin-pass we examine the effect of another type of rolling, asymmetrical rolling, on the texture and the microstructure of the galvanization layer.

Asymmetrical rolling is currently studied more and more because it makes it possible to decrease the rolling strength and thus the energy consumption.

This rolling, although it does not change the basic microstructures of the zinc coating, modifies the textures, both from the viewpoint of intensity as of peaks positions in the poles figures.

In this chapter, the textures evolution is studied for an asymmetrical rolling both on a bulk zinc sheet (ZnCuTi) and on a layer of galvanized steel sheet.

The flow line model was used and adapted to asymmetrical rolling. It makes it possible to carry out simulations as precise as with a finite elements model, but with shorter computation time.

These studies which are quite similar as such will show great differences in the texture evolutions owing to the fact that the reduction ratios are definitely different. In the case of the asymmetrical rolling of zinc-copper-titanium, reductions of 20% per pass were carried out to have a total reduction ratio of 50% (in 3 rolling paths), whereas the asymmetrical rolling of galvanized sheets requires only a reduction of approximately 2%. With an aim of better identifying the activated slip systems, experimental textures are compared with simulated textures. Modeling used a Taylor model in the full constrained mode (Full Constrained FC Taylor).

The texture obtained after asymmetrical rolling of bulk zinc alloy sheets display a shift of the intense c axis peaks in the (00.2) poles figure different from that observed after symmetrical rolling.

The textures of the galvanized coatings present a broadening of the central peak on the (00.2) poles figure after skin-pass. Although textures are not modified to a large extent by skin-pass rolling because of the low reduction ratio, the twinning component is noticeably strengthened by the asymmetrical skin-pass rolling.

## **I. Evolution de texture après laminage asymétrique du ZnCuTi**

### **Experimental and simulation textures in an asymmetrically rolled zinc alloy sheet**

F. Zhang <sup>a,b</sup>, G. Vincent <sup>a</sup>, Y.H. Sha <sup>b</sup>, L. Zuo <sup>b</sup>, J.J. Fundenberger <sup>a</sup> and C. Esling <sup>a\*</sup>

<sup>a</sup> *LETAM, CNRS UMR 7078, ISGMP, Université de Metz, 57012 Metz Cedex 01, France*

<sup>b</sup> *School of Materials and Metallurgy, Northeastern University, Shenyang 110004, China*

*\*Corresponding Author: C. Esling*

*Fax: +33 3 87315377 E-mail: esling@letam.sciences.univ-metz.fr*

### **Abstract**

The crystallographic textures developed in a zinc-copper-titanium (ZnCuTi) alloy sheet during asymmetric rolling have been studied. The strain history undergone by the sheet has been calculated by an elasto-plastic flow line model. The so obtained successive strain increments have been used as input data to a Taylor model, to simulate the corresponding texture evolution in the sheet. It is shown that the shear strain is the dominant factor that governs the texture evolution during asymmetric rolling.

*Keywords* : texture simulation, zinc alloy, polycrystalline plasticity, asymmetric rolling

### **Introduction**

Asymmetric rolling is known to have several merits such as requiring less rolling force, rolling torque and allowing to reach a very small thickness with a high rolling precision. Some investigations have been performed to study the evolution of the textures in cubic materials such as steel and aluminum during asymmetric rolling [1,2]. However, few studies have been carried out on asymmetric rolling of hexagonal materials. Zinc-copper-titanium is an hcp alloy widely used in the building industry. Its mechanical properties like bendability and creep behaviors are dependent on the texture of the alloy [3,4]. Previous studies have been restricted to the texture evolution during the traditional symmetric rolling [5,6]. With asymmetric rolling becoming increasingly important in the recent years, it is interesting to study the texture evolution of the same zinc alloy but for asymmetric rolling. In the present work, ZnCuTi sheets have been

asymmetrically rolled. The so obtained textures after asymmetric rolling have been experimentally determined and simulated by means of an elasto-plastic flow line model combined to a deformation model for polycrystalline plasticity.

### Experimental

The chemical composition of the alloy is Zn-0.17Cu-0.08Ti in weight percent. Copper is in substitutional solid solution in the zinc matrix, whereas titanium forms a second intermetallic hard phase of TiZn<sub>15</sub> (TiZn<sub>16</sub>) that precipitates in the shape of a network of thin bands [3]. The optical micrograph and the crystallographic texture of the as received sheet (1.35 mm thick, see Table 1) of the ZnCuTi alloy are shown in Fig.1. The bright second intermetallic phase of TiZn<sub>15</sub> is distributed homogeneously in the zinc matrix, and the gray zinc matrix (with copper in solid solution) has a fully recrystallized microstructure with a grain size of about 10µm.

The industrial rolling route of the ZnCuTi consists of three successive rolling paths as summarized in Table 1. The present study concerns only the third and final rolling path. Thus the as-received sheets have been taken after the second industrial rolling path at a 1.35 mm thickness. These industrial sheets have undergone a final symmetrical or asymmetrical rolling on a laboratory rolling mill. Thus the initial texture to be considered for the Taylor simulation is the texture of the as-received 1.35 mm thick sheet (Fig. 1).

Pole figure measurements have been carried out on an X-ray texture goniometer in back reflection mode with Fe filtered Co-K<sub>α</sub> radiation. The (00.2), (10.0), (10.1) and (10.2) incomplete Pole Figures have been measured up to a 80° tilt angle to compute the orientation density functions (ODFs) and the complete recalculated pole figures. This texture has been determined by the harmonic method and introduced in the Taylor program by means of the set of the ODF coefficients. The surface texture of the sheet is characterized by a 20° c-axis tilt from the normal direction (ND) to the (-RD) (opposite to the rolling direction), with a strong maximum in the orientation density functions (ODF) centered at the ideal orientation  $\varphi_1=270^\circ$ ,  $\Phi=20^\circ$ ,  $\varphi_2=30^\circ$ .

First Rolling					Second Rolling			Final Rolling		
Temperature		Thickness		Roller speed	Exit Temp	Exit thickn ess	Roller speed	Exit Temp	Exit thickn ess	Roller speed
Enter	Exit	Enter	Exit							
°C	°C	mm	mm	m/min	°C	mm	m/min	°C	mm	m/min
250	220	9	2.4	30	180	1.35	300	160	0.65	300

Table 1 : The rolling conditions of the as-received Zn-0.17Cu-0.08Ti alloy.

Symmetric and asymmetric rolling have been performed at room temperature up to a total thickness reduction of 50% with about 20% reduction per pass. The speed ratio of the upper to the lower roller during asymmetric rolling is 1.17 and 1.28, respectively.

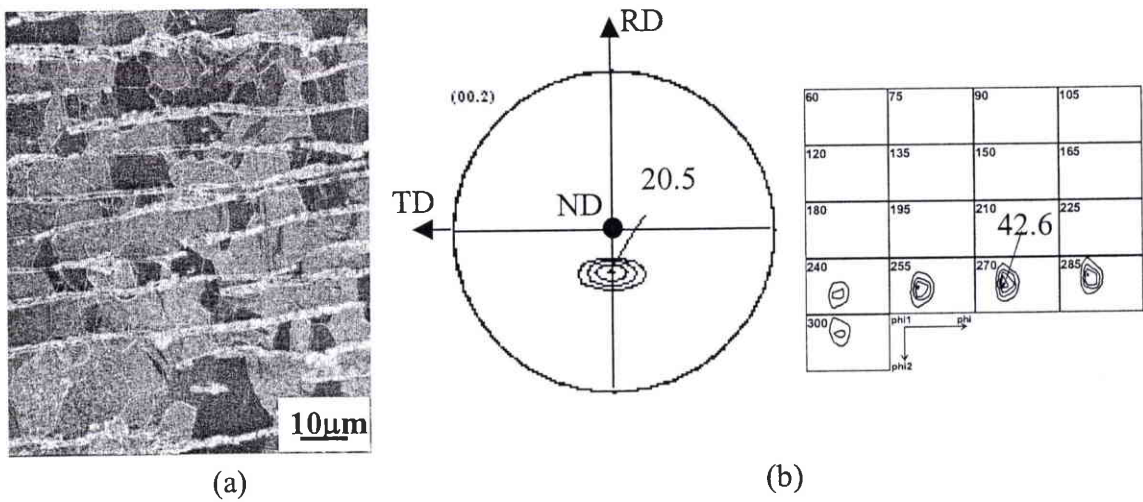


Fig. 1 The micrograph (a) and texture (b) of the as-received Zn-0.17Cu-0.08Ti (wt.%) sample.

### Texture and microstructure evolution after symmetric and asymmetric rolling

As the mechanical properties such as bendability and creep behaviors of Zn sheets mainly depend on the characteristics and the texture of the surface [3-5], the analysis of the texture evolution in this work is focused on the sheet surface. Fig. 2 shows the evolution of the microstructures and experimental textures during the symmetric and asymmetric rolling. The microstructures of the alloy are both refined during symmetric and asymmetric rolling. The c-axis component is tilted by  $20^\circ$  from the normal direction (ND) in both cases, but to the (-RD) (opposite to the rolling direction) by symmetric rolling while it is tilted to the (+RD) (rolling direction) by asymmetric rolling. The intensity in the pole figure of the main peak is 25.1 (multiples of random units) for symmetric rolling, while for asymmetric rolling it rises to 30.0 with the speed ratio of 1.17 and to 37.8 with the speed ratio of 1.28. It is obvious that  $20^\circ$  tilted c axis peak is strengthened by the asymmetric rolling. This is an interesting result for it is believed that the sharper the c axis peak component is, the better the low temperature bendability and cracking resistance [5]. Thus it is worth to study the texture evolution during asymmetric rolling of ZnCuTi alloy sheets.



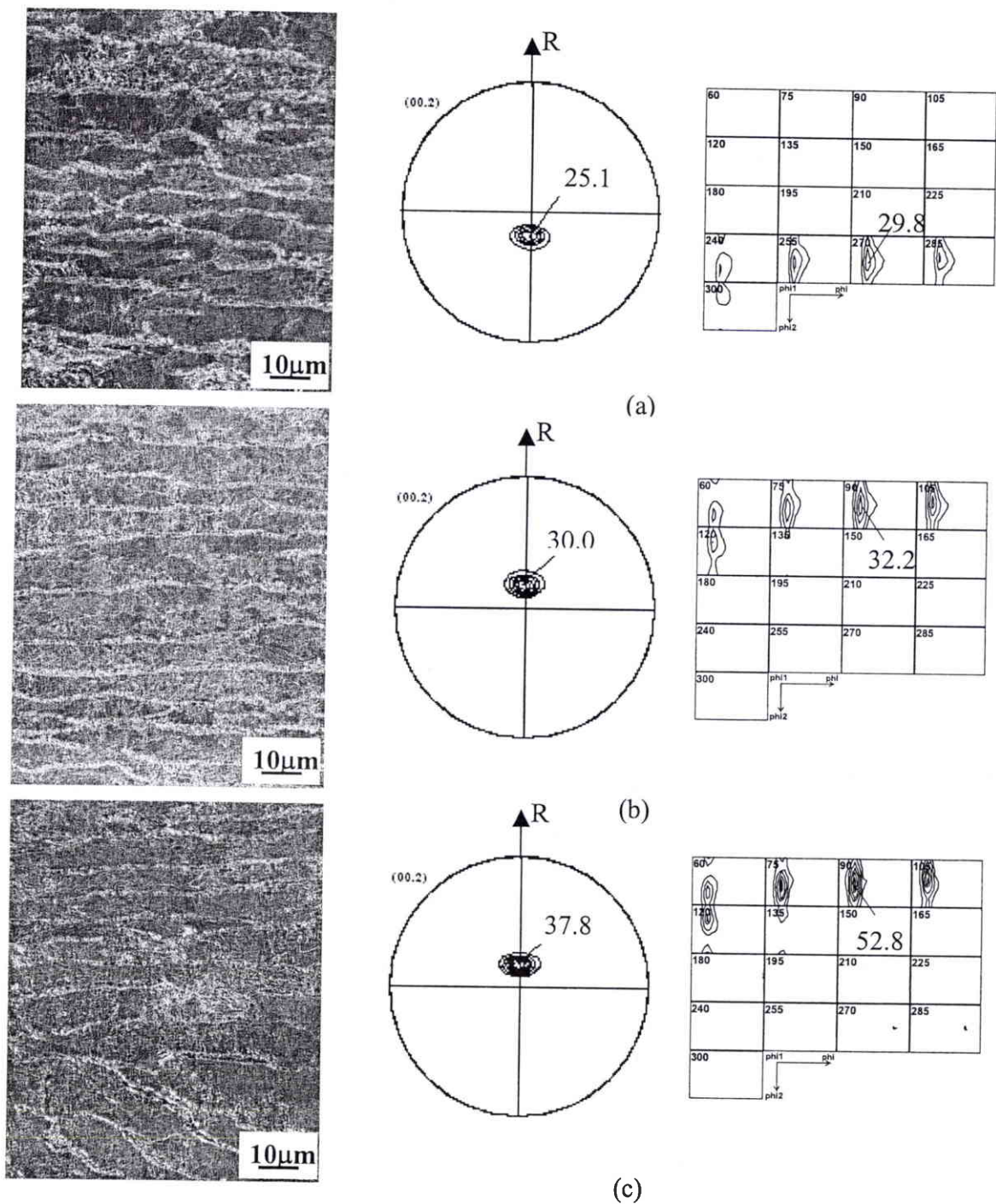


Fig.2 The microstructure and texture after symmetric and asymmetric rolling: (a) symmetric rolling; (b) asymmetric rolling, speed ratio 1.17; (c) asymmetric rolling, speed ratio 1.28.

### Rolling calculation and deformation texture simulation

A flow line model basing on the work of Counhaye [7,8] is adapted to simulate the strain histories of the studied ZnCuTi sheet. The calculation is based on the integration of elasto-plastic constitutive equations along flow lines. Possible coupling between the derivatives in different directions is removed by the introduction of additional unknowns. The compatibility with the initial unknowns is achieved by iterative adjustment of the flow line shape and the shear stress across the thickness of the sheet. The procedure leads to stationary solutions similar to those given by the finite element method, but for a shorter run-time (about half an hour on a personal computer) [8].

For the simulation of the deformation texture, a visco-plastic Taylor model in its full-constrained version – rather than one of the several relaxed versions - could be applied to the present ZnCuTi alloy. Indeed, the specific microstructure with the network of thin plates of hard intermetallic TiZn<sub>15</sub> phase constrains the Zn matrix with Cu in solid solution. This had also been suggested in [6]. The rate sensitive Taylor codes used in the present simulation have been kindly provided by P. Van Houtte (FC Taylor code implemented as described in [9]) and by L. S. Toth (LSTaylor, 1993 [10]).

Before performing simulations, we have to carefully analyze the significance of the shear strain increments  $\Delta e_{13}$  in the rolling process. It has been explained that positive shear increments mean that the velocity of the roller is faster than that of the sheet and negative shear increments contrarily mean that the velocity of the sheet is faster than that of the roller [2]. Indeed the friction forces acting along the surfaces of the rolls between the entrance and the neutral point advances the strip between the rolls, while the friction forces acting between the neutral point and the exit opposes the rolling action. The change in the direction of the friction forces occurs at the neutral point. However as for asymmetric rolling the velocity of the upper roller is faster than that of the lower roller, the neutral point moves toward the exit. Therefore, the shear strain increments  $\Delta e_{13}$  remains positive in the upper side throughout the rolling nip. Its influence on the development of the asymmetric rolling texture will be investigated in the following numerical simulation. The strain increments (in fact displacement gradient) tensors used in the simulation of the deformation texture are written as below:

$$[\Delta e_{ij}] = \begin{bmatrix} \Delta e_{11} & 0 & \Delta e_{13} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta e_{33} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \Delta e_{11} & 0 & \alpha \cdot \Delta e_{11} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta e_{11} \end{bmatrix} \quad (1)$$

The shear ratio  $\alpha$  defined as  $\alpha = \frac{\Delta e_{13}}{\Delta e_{11}}$  is introduced, as suggested in Lee's work [2]. This technique allowed for a systematic study of the influence of the shear component during asymmetric rolling on the texture evolution. The values provided by the flow line model for the shear ratio were too small, as they could not exceed the numerical value 1 with reasonable choices of the parameters like friction coefficient. The deformation path in the rolling gap has been discretized into small deformation paths. The corresponding normal strain increments  $\Delta e_{11}$  and  $\Delta e_{33}$  have been calculated by the above mentioned flow line model. These latter strain increments have been used as input data to the Taylor modeling which thus sticks step by step to a realistic strain path in the rolling gap, see Fig.3. The critical shear stresses used for the simulation are :

$$\frac{\tau_{prism}}{\tau_{basal}} = 15 ; \frac{\tau_{(c+a)}}{\tau_{basal}} = 2 ; \frac{\tau_{(twin)}}{\tau_{basal}} = 30. \quad (2)$$

The  $\langle c+a \rangle$  gliding considered in the Taylor simulation is the  $\{11.2\}\langle 11.3 \rangle$  pyramidal gliding system that was already found to provide good simulation results on polycrystalline plasticity of ZnCuTi sheets [6].

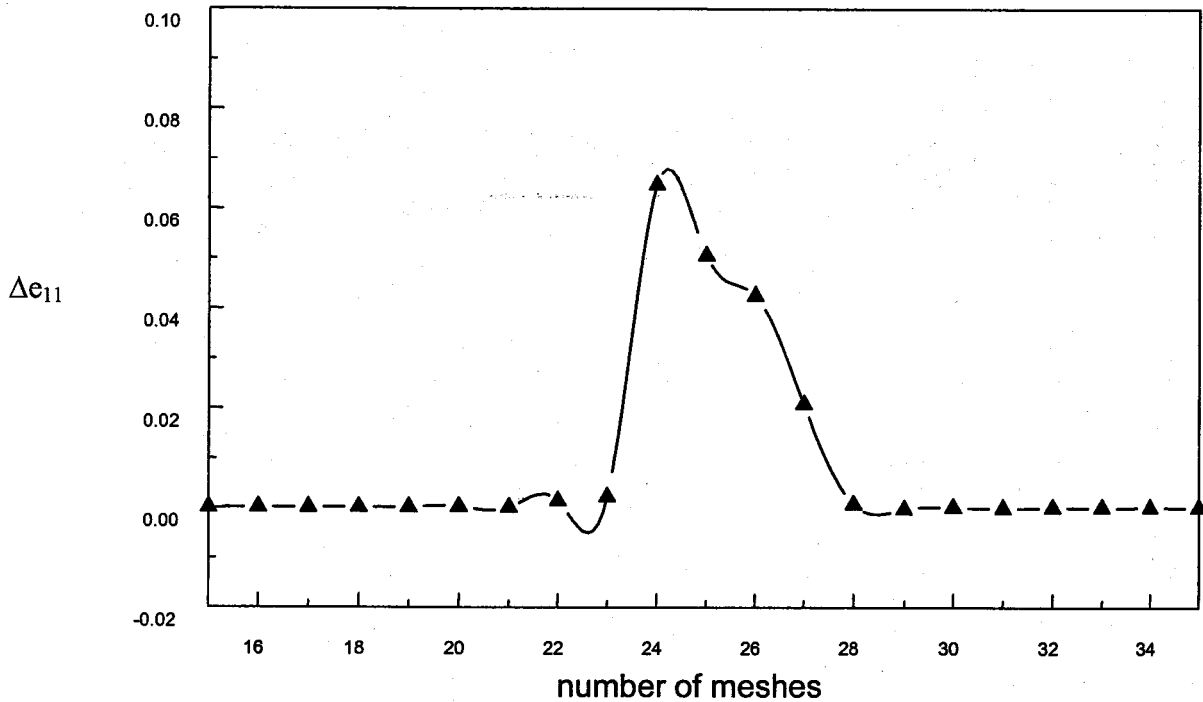


Fig. 3 The normal strain increments obtained by the flow line model during asymmetric rolling, speed ratio 1.28 (▲ Triangular dots calculated — Curve interpolated).

Fig.4a shows the simulated pole figures obtained with different values of the shear ratio for a speed ratio of 1.28. In the case of plane strain deformation ( $\alpha=0$ ), the c axis peak which is tilted from ND to (-RD) is strengthened. With the increase of the shear ratio, the c axis peak tilted to (-

RD) gradually weakens, while the c axis peak tilted to (+RD) simultaneously appears and strengthens. When  $\alpha$  reaches 2.5, both the simulated pole figures and the ODFs (Fig.4b) show a fair agreement with the experimental results, but for the absolute values of the intensity of the texture component which is weaker than the experimental result. It is obvious that the large positive shears during asymmetric rolling lead to the specific texture evolution. However, with  $\alpha$  continuously increasing, e.g. when  $\alpha$  reaches 10, the c axis peak component moves to the center of the pole figure, which is no longer in agreement with the experimental results.

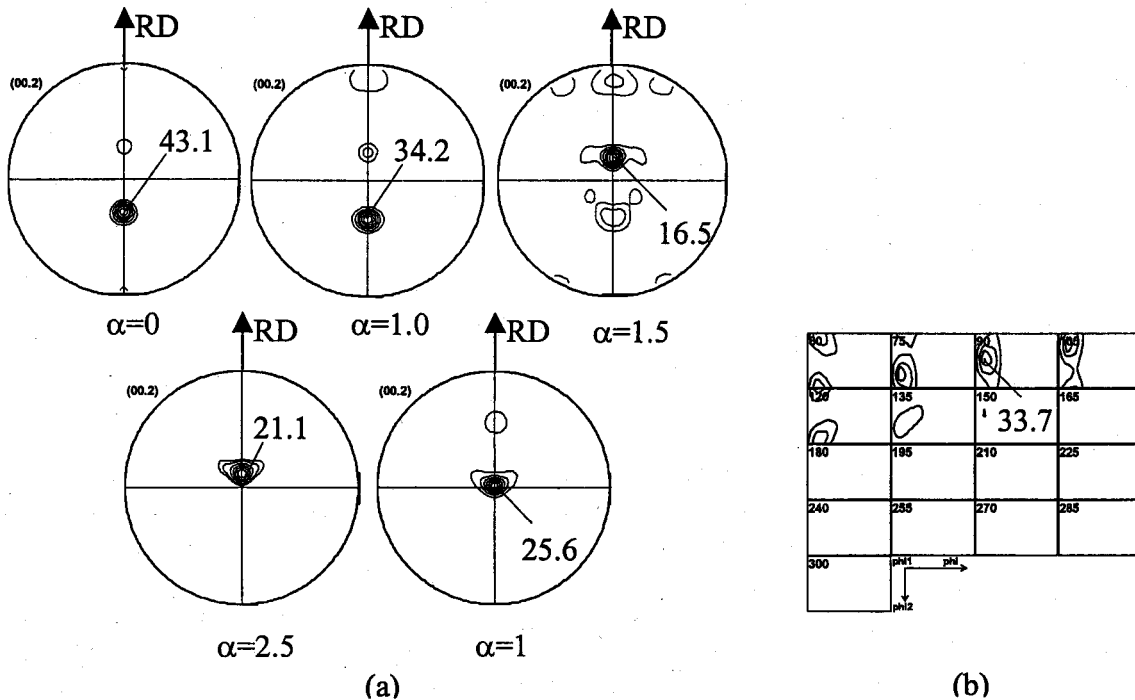


Fig. 4 The simulated texture evolution: (a) simulated pole figures with different values of shear parameter  $\alpha$ ; (b) simulated ODFs when  $\alpha=2.5$ .

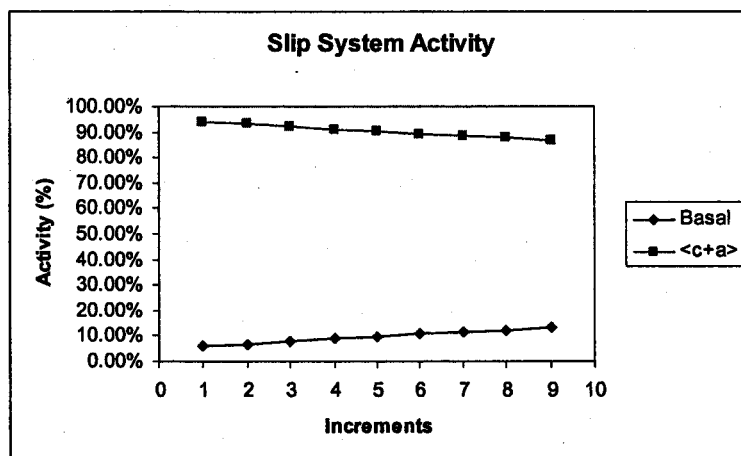


Fig. 5 : Shows the slip system activity, rhombus for basal slip system and square for (11.2)<11.3> slip system.

The Taylor simulations show that the plastic deformation is almost totally accommodated by the pyramidal and basal glide systems as shown by slip systems activities, Fig. 5. This result was foreseeable as the prismatic glide system and the twinning system are on the boundary or even outside the monocrystalline yield locus<sup>1</sup>. Nevertheless these additional systems have been maintained in the simulation to always ensure 5 linearly independent deformation systems.

### Summary

Sharper textures with the c axis 20° tilted to (+ND) (Normal Direction) component have been obtained in the fast side during asymmetric with respect to symmetric rolling of ZnCuTi alloy. A flow line model has been used in combination with a full-constraint Taylor model to simulate the deformation process. As sharper textures could be obtained during asymmetric with respect to symmetric rolling, it is suggested that asymmetric rolling in the final pass should improve the mechanical characteristics of the ZnCuTi sheet, notably its bendability in view of industrial applications.

### Acknowledgements

One of the authors (F. Zhang) has been supported by the Chinese-French Cooperative Research Project (PRA MX00-03) and by the «Mission Scientifique universitaire de la Direction de la Recherche ».

The authors are indebted to the reviewers for valuable comments.

### References

- [1] Lee SH, Lee DN. International Journal of Mechanical Sciences 2001;43:1997
- [2] Kim KH, Lee DN. Acta Materialia 2001;49:2583
- [3] Wegria J. Thesis, UST Lille, France, 1984
- [4] Galledou Y. Thesis, University of Metz, France, 1992
- [5] Diot M, Funderberger JJ, Philippe MJ, Wegria J, Esling C. Scripta Mater 1998 ;39 :1623
- [6] Philippe MJ, Wagner F, Mellab FE, Esling C, Wegria J. Acta Metall Mater 1994;42 :239
- [7] Counhaye C. Thesis, University of Liege, Belgique, 2000
- [8] Counhaye C. Rev Met, Paris, (1998), p. 930
- [9] Van Houtte P., Textures and Microstructures, 1988 ; 8-9 :313
- [10] Tóth L.S., 'rate sensitive Taylor software', University of Metz, 1993

---

<sup>1</sup> Private communication by the reviewer

## **II. Evolution de texture après laminage asymétrique d'une tôle galvanisé**

### **Experimental and simulation textures in a symmetrically and asymmetrically skin-passed zinc galvanized sheet**

G. Vincent<sup>a</sup>, F. Zhang<sup>b</sup>, J.J. Fundenberger<sup>a</sup> and C. Esling<sup>a,✉</sup>

<sup>a</sup>LETAM, CNRS UMR 7078, University of Metz, Ile du Saulcy, 57012 Metz Cedex 01, France

<sup>b</sup>School of Materials and Metallurgy, Northeastern University, Shenyang 110004, China

✉Corresponding author. Tel. : +33-3873-15390 ; fax : +33-3873-15377  
E-mail address : esling@letam.univ-metz.fr

#### **Abstract**

The crystallographic textures developed in a galvanized zinc sheet during symmetrical and asymmetrical skin-pass have been studied. The strain history undergone by the sheet has been calculated by an elasto-plastic flow line model. The so obtained successive strain increments have been used as input data to a Taylor model, to simulate the corresponding texture evolution in the zinc layer. It is shown that the shear strain is the dominant factors that governs the texture evolution during asymmetrical skin-pass.

Keywords : Texture simulation ; Galvanized zinc sheet ; Polycrystalline plasticity ; Asymmetrical skin-pass.

#### **1. Introduction**

In symmetrical rolling, the rollers have identical speed and diameter. In asymmetrical rolling, it is possible to obtain different circumferential speeds by modifying the diameter or the angular velocity of one roller with respect to the other [1].

Asymmetric rolling is known to have several merits such as requiring less rolling force, rolling torque and allowing to reach a very small thickness with a high rolling precision [2].

Analytical and experimental approaches were already made [3], but there is still a lack of systematic studies on the evolution of the crystallographic textures during asymmetrical rolling, especially on asymmetrical skin-pass of sheets and zinc galvanized sheets.

Previous studies were restricted to the evolution of textures during conventional symmetrical rolling [4, 5, 6]. The evolution of textures during asymmetrical rolling was studied almost only

for cubic materials [7, 8]. For hexagonal materials a study of Zhang et al. [9] has been carried out on zinc-copper-titanium sheets, at a total rolling reduction of 50%. The study presented also relates to zinc but as a deposited layer on galvanized steel sheets.

The steel processing industry shows a raising interest in asymmetrical rolling. It is thus interesting to extend the study to asymmetrical skin-pass rolling. In particular, we studied the evolution of texture of the zinc layer of galvanized sheets after an asymmetrical skin pass. The skin-pass reduction, always relatively small, amounts here to 2%. Indeed, the mechanical properties of zinc, such as the bendability and cracking behavior can be directly related to the crystallographic texture, which is modified by the skin pass rolling [10]. The experimental textures are then compared to textures obtained by numerical simulation with a flow line model combined to a polycrystalline plasticity model.

## 2. Experimental

### a) Material

The studied material is a zinc coating deposited on a steel sheet by hot galvanizing [11]. The steel sheet has a 0.6 mm thickness whereas the zinc layer has on each side of the sheet a thickness of 10  $\mu\text{m}$  approximately. Zinc is an anti-corrosion protective layer which confers a cathodic on coated. The chemical composition of the zinc layer is Zn-0.2 Al (wt.%) expressed as weight percent.

The optical micrographs (fig. 1) present the surface of the zinc layer after a Finkeldey etching [12]. The various levels of gray show that the grains were etched selectively according to their orientations. The average grain size is equal to 200  $\mu\text{m}$ .

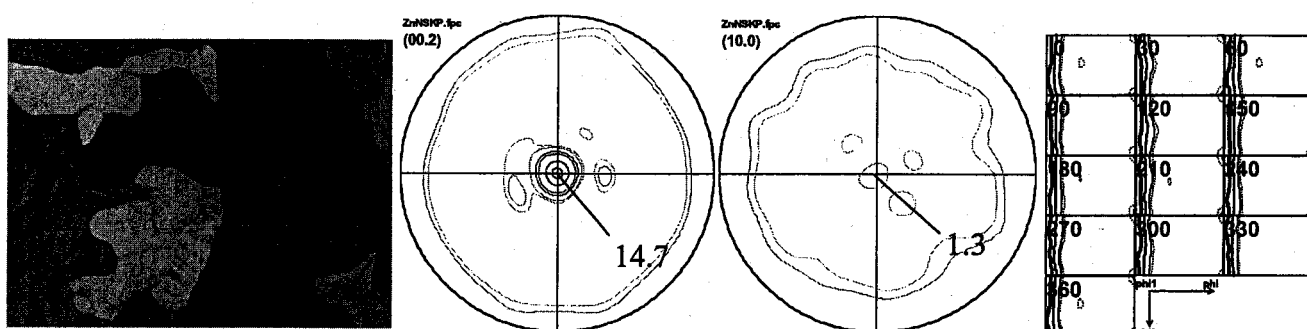


Fig. 1 : Micrograph (a), basal and prismatic PFs (b) and ODF (c) of the zinc layer of the as-received galvanized sheet.

### b) Skin pass

The coated sheets were symmetrically and asymmetrically skin-passed to a reduction ratio of 2%, with lubrication and at room temperature. The microstructure and texture of these coatings were studied on each side of the sheet. The speed ratio of the upper to the lower roller during asymmetric rolling was 1.17 and 1.28, respectively.

### c) Texture determination

Pole figure measurements have been carried out on an X-ray texture goniometer in back reflection mode with Fe filtered Co-K $\alpha$  radiation. The (00.2), (10.0), (10.1), (10.2) and (20.1) incomplete Pole Figures have been measured up to a 80° tilt angle to compute the orientation density functions (ODFs) and the complete recalculated pole figures. This texture has been determined by the harmonic method and introduced in the Taylor program by means of discretized ODF calculated from the set of the ODF coefficients. The maximum rank of the ODF series expansion was set equal to 12 to benefit of some smoothing to limit in the texture determination the effect of coarse grains.

The surface texture is characterized by a  $\langle c \rangle$  axis component in the center of the (00.2) pole figure with a maximum of 14.7. The pole figures and the orientation density function show a basal fiber texture with  $\langle c \rangle$  axis parallel to the normal direction of sheet.

## 3. Texture and microstructure evolution after symmetric and asymmetric Skin-Pass

As the mechanical properties such as bendability and creep behaviors of galvanized sheets mainly depend on the characteristics and the texture of the surface [10], the analysis of the texture evolution in this work is focused on the sheet surface. Fig. 2 shows the evolution of the microstructures and experimental textures for the upper sheet side, corresponding to the fastest roller, after the symmetric and asymmetric skin-pass.

In the interior of the zinc grains many twins appear, as a result of the skin-pass of the zinc coating.

The twinning rate is weaker (qualitatively, according to the microstructures) for the sample that underwent the symmetrical skin-pass. In the case of the asymmetrical skin-pass, it is hardly not possible to distinguish different twinning rates according to speed ratio of 1.17 or 1.28, on the basis of the microstructures alone (the increase from the smallest to the highest speed ratios amounts to only 10%).

The skin-pass thus creates a significant deformation twinning. The  $\langle c \rangle$  axes of the resulting twins are directed to +RD (Rolling Direction) and -RD on the (00.2) pole figure, so that the twins are oriented twins. The corresponding  $\langle a \rangle$  axes are oriented to the sheet normal direction ND, as can be seen in the center of the (10.0) pole figure. This corresponds to the (11.2) $\langle 11.3 \rangle$  twinning type. The grains that do twin almost keep their initial orientation, with the  $\langle c \rangle$  axes oriented to the normal direction (basal fiber texture).



An additional effect of the skin-pass is to decrease the intensity of the sharp central peak in the (00.2) pole figure from 14.7 for the initial non skin-passed sample to 8.6 for a symmetrical skin-passed and 10 for an asymmetrical skin-passed (roller speed ratio 1.28) sample.

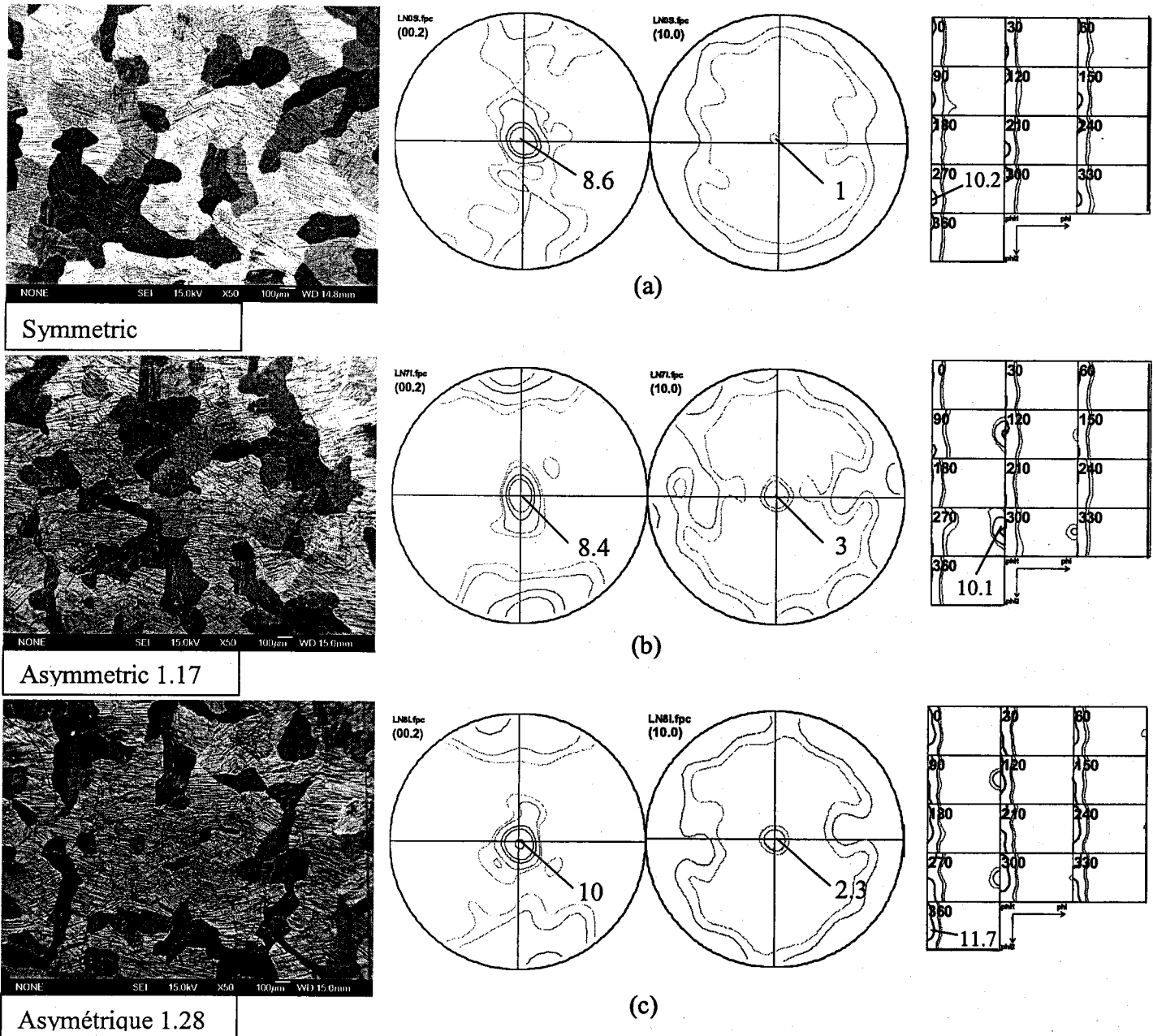


Fig.2 : The microstructure and texture after symmetric and asymmetric rolling : (a) symmetric rolling ; (b) asymmetric rolling, speed ratio 1.17 ; (c) asymmetric rolling, speed ratio 1.28

The texture index calculated for the various samples is presented in table 1. This table shows that the asymmetrical skin pass does not decrease the texture index as much as the symmetrical skin pass.

	Non skin-passed	Symmetrical skin passed	Asymmetrical skin passed	
Roller speed ratio	None	1	1.17	1.28
Texture Index	4.5	2.3	3	3

Table 1: Texture Index calculated for the various samples.

#### **4. Rolling calculation and deformation texture simulation**

A flow line model basing on the work of Counhaye [13, 14] is adapted to simulate the strain histories of the studied galvanized sheet. The calculation is based on the integration of elasto-plastic constitutive equations along flow lines. Possible coupling between the derivatives in different directions is removed by the introduction of additional unknowns. The compatibility with the initial unknowns is achieved by iterative adjustment of the flow line shape and the shear stress across the thickness of the sheet. The procedure leads to stationary solutions similar to those given by the finite element method, but for a shorter run-time (about half an hour on a personal computer) [14].

For the preceding study (Zhang et al.) [9] on bulk zinc alloy sheet (ZnCuTi) the flow line model could be used directly as developed by Counhaye for the simulation of the rolling of sheets. Oppositely, for the simulation of the skin pass of zinc galvanized sheets, the model had first to be adapted to a bimaterial formed of a steel sheet with a coating layer. The flow lines were attributed the mechanical properties of the respective materials, steel in the bulk and zinc in the coating. In addition the spacing of the successive flow lines was set according to a geometrical progression, so as to account for the small thickness of the zinc coating (10  $\mu\text{m}$  approximately). The zinc coating was described by the three last and most narrow flow lines.

For the simulation of the deformation texture, a visco-plastic Taylor model in its full-constrained version – rather than one of the several relaxed versions - could be applied to the present galvanized sheet.

The rate sensitive Taylor codes used in the present simulation have been kindly provided by P. Van Houtte (FC Taylor code implemented as described in [15]) and by L. S. Toth (LSTaylor, 1993 [16]).

Before performing simulations, we have to carefully analyze the significance of the shear strain increments  $\Delta e_{13}$  in the rolling process. It has been explained that positive shear increments mean that the velocity of the roller is faster than that of the sheet and negative shear increments contrarily mean that the velocity of the sheet is faster than that of the roller [8]. Indeed the

friction forces acting along the surfaces of the rolls between the entrance and the neutral point advances the strip between the rolls, while the friction forces acting between the neutral point and the exit opposes the rolling action. The change in the direction of the friction forces occurs at the neutral point. However as for asymmetric rolling the velocity of the upper roller is faster than that of the lower roller, the neutral point moves toward the exit. Therefore, the shear strain increments  $\Delta e_{13}$  remains positive in the upper side throughout the rolling nip. Its influence on the development of the asymmetric rolling texture will be investigated in the following numerical simulation. The strain increments (in fact displacement gradient) tensors used in the simulation of the deformation texture are written as below:

$$[\Delta e_{ij}] = \begin{bmatrix} \Delta e_{11} & 0 & \Delta e_{13} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta e_{33} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \Delta e_{11} & 0 & \alpha \cdot \Delta e_{11} \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta e_{11} \end{bmatrix} \quad (1)$$

The deformation path in the rolling gap has been discretized into small deformation paths. The corresponding normal strain increments  $\Delta e_{11}$  and  $\Delta e_{33}$  have been calculated by the above mentioned flow line model. These latter strain increments have been used as input data to the Taylor modeling which thus sticks step by step to a realistic strain path in the rolling gap, see Fig.3. The critical shear stresses used for the simulation are :

$$\frac{\tau_{prism}}{\tau_{basal}} = 15 ; \frac{\tau_{\langle a \rangle}}{\tau_{basal}} = 10 ; \frac{\tau_{\langle c+a \rangle}}{\tau_{basal}} = 10 ; \frac{\tau_{\langle twin \rangle}}{\tau_{basal}} = 8. \quad (2)$$

The  $\langle c+a \rangle$  gliding considered in the Taylor simulation is the  $\{11.2\}\langle 11.3 \rangle$  pyramidal gliding system that was already found to provide good simulation results on polycrystalline plasticity of ZnCuTi sheets [5, 9].

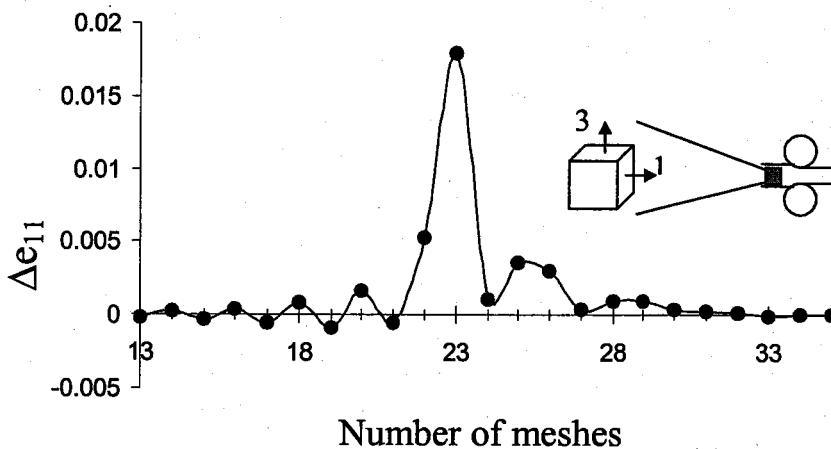


Fig.3 : The normal strain increments obtained by the flow line model during asymmetric rolling, speed ratio 1.28 (● circle dots calculated — curve interpolated)

Figure 4a shows the simulated pole figures obtained with various values of  $\alpha$  for a roller speed ratio of 1.28. In the case of plane strain deformation ( $\alpha = 0$ ), twinning is the main deformation mechanism determining the texture evolution, as it can be concluded from a mere examination of the pole figures. The more  $\alpha$  increases, the more the  $\langle c \rangle$  axes will spread out along the rolling direction. For  $\alpha = 0.75$ , the ODF (fig.4b) and the pole figures agree well with the experimental results (fig.2).

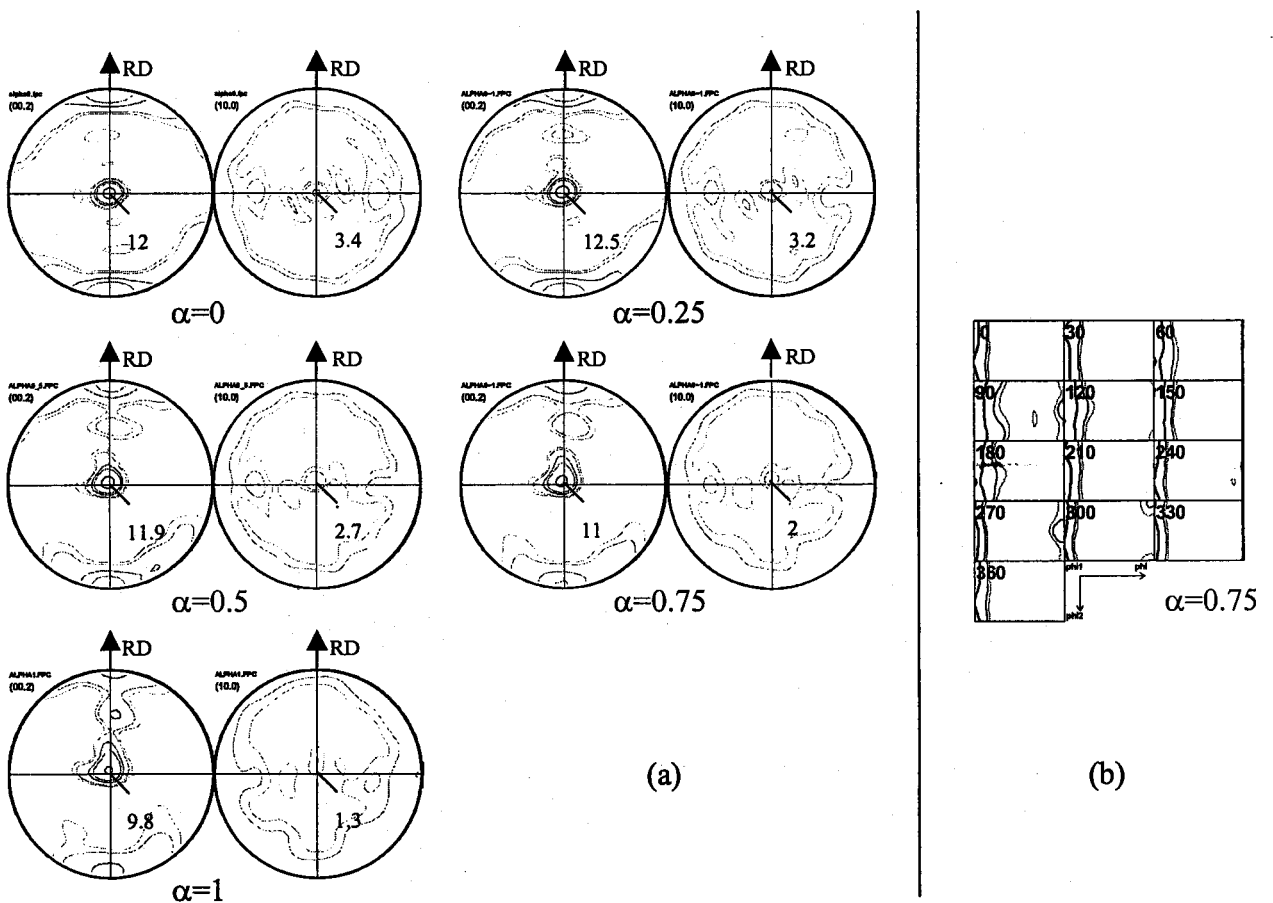


Fig. 4 : The simulated texture evolution : (a) simulated pole figures with different values of shear parameter  $\alpha$  ; (b) simulated ODFs when  $\alpha = 0.75$ .

In the latter case, Taylor simulation shows that the plastic deformation is accommodated by the basal and pyramidal slip systems (fig. 5). Twinning also contributes to accommodate this deformation as shown on Fig.5. The prismatic slip system is located on the boundary or even outside the monocrystalline yield locus. However this slip system was maintained to ensure 5 independent deformation systems.

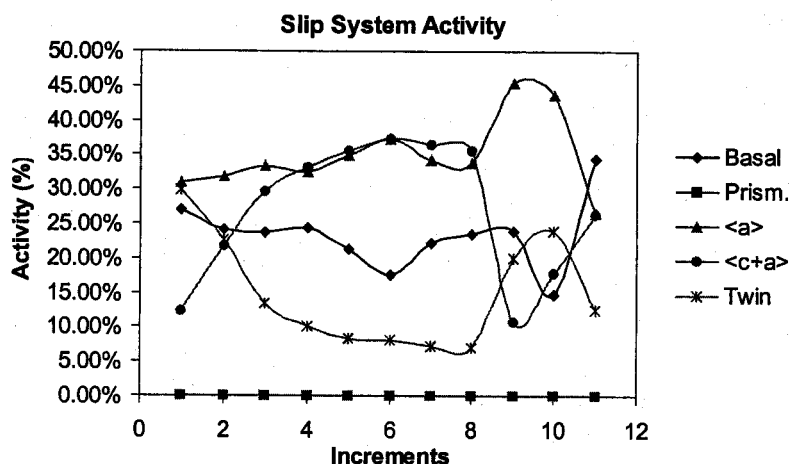


Fig.5 : Shows the slip system activity (roller speed ratio of 1.28), rhombus for basal slip system, large square for prismatic slip system, triangle for  $\langle a \rangle$  slip system, circle for  $\langle c+a \rangle$  slip system and little square for twinning system.

## 5. Summary

A previous work by Zhang et al. [9] studied the symmetrical and asymmetrical rolling of a bulk zinc alloy to reduction rates as high as 50%. It was shown that asymmetrical rolling should have a beneficial effect on the mechanical properties of the sheet, notably its bendability and its cracking resistance. The present study concerns symmetrical and asymmetrical skin-pass of zinc galvanized sheets. Despite the reduction rates amount only to the order of 2%, noticeable modifications of both the microstructure and the texture could be shown. The main effect was the spread out of the basal  $\langle c \rangle$  axes component along the rolling direction and the increase of the twinned fraction, with the twins oriented to the rolling direction (+ and -RD). The strong shear component created by the asymmetrical rolling enhanced the effect of the skin-pass and decreased even more the size of the coherent domains, restricting possible crack propagation. Alike for rolling, asymmetrical skin-pass impregnates microstructure and texture modifications that should be beneficial to the mechanical properties of the zinc layer (bendability, cracking resistance), and this effect is enhanced with increasing roller speed ratio.

## Acknowledgements

The authors thank Cockerill Sambre (Belgium) and Umicore (Belgium) for having provided the galvanized sheets and the National Key Laboratory, North Eastern University Shenyang, China, for having performed the symmetrical and asymmetrical skin-passes.

**References :**

- [1] Gao H., Ramalingam S.C., Barber G.C., Chen G., J. Mat. Process. Tech. 124 (2002) 178.
- [2] Markowski J., Dyja H., Knapiński M., Kawalek A., J. Mat. Process. Tech. 138 (2003), 183.
- [3] Hwang Y., Tzou G., Int J.Mech. Sciences (1997);39 (3), 289.
- [4] Diot M, Fundenberger J.J., Philippe M.J., Wegria J., Esling C., Scripta Mater (1998) ;39 :1623.
- [5] Philippe MJ, Wagner F, Mellab FE, Esling C, Wegria J., Acta Metall Mater (1994);42 :239.
- [6] Gaignard S., Thesis, Université de Metz, France, (2000).
- [7] Lee SH, Lee DN., International Journal of Mechanical Sciences (2001);43:1997.
- [8] Kim KH, Lee DN., Acta Materialia (2001);49:2583.
- [9] Zhang F., Vincent G., Sha Y.H., Zuo L., Fundenberger J.J., Esling C., Scripta Mater. 50 (2004), 1011.
- [10] Wegria J., Thesis, UST Lille, France, (1984).
- [11] Dunham K.J., Metal Finishing, 100 (2002), 20.
- [12] Metallographic atlas of zinc and zinc alloys, European zinc producers.
- [13] Counhaye C., Thesis, University of Liege, Belgique, (2000).
- [14] Counhaye C., Rev Met, Paris, (1998), p. 930.
- [15] Van Houtte P., Textures and Microstructures,(1988);8-9 :313.
- [16] Tóth L.S., 'rate sensitive Taylor software', University of Metz, (1993).

## **Chapitre 4 : Etude des joints de grains**

### **Introduction**

Le skin-pass symétrique ou asymétrique des revêtements de zinc joue un rôle important dans l'amélioration des propriétés mécaniques, puisque la déformation par skin-pass des revêtements crée des domaines plus petits que la taille de grains. Les textures obtenues ont été modifiées par le skin-pass. Si les textures ont leur importance dans la résistance à la fissuration, les propriétés des joints de grains y contribuent également. C'est pourquoi nous nous intéresserons à l'étude des joints de grains, notamment spéciaux (CSL), en relation avec les déformations d'un revêtement de zinc soumis à de la traction uniaxiale.

Ce chapitre tentera de mettre en évidence les rôles de divers paramètres tels que la nature du joint (spécial ou aléatoire) et l'orientation du plan du joint de grain par rapport à la direction de sollicitation uniaxiale. Dans le cas des revêtements de zinc, la solidification entraîne une croissance de grains colonnaires. On fera donc l'hypothèse que le plan du joint de grains est toujours perpendiculaire au plan de la tôle et qu'une possible légère déviation sera négligée.

En marge de ce travail qui étudie également des problèmes d'intérêt industriel, la table des CSL a pu être calculée sur la base de critères énergétiques et comparée à la table déterminée géométriquement dans ce chapitre. Cette table calculée par dynamique moléculaire (présentée en annexe), montre un bon accord entre les deux méthodes.

La deuxième partie de ce chapitre, qui porte sur l'influence d'un champ magnétique sur les caractéristiques des joints de grains lors de la transformation de phase d'un acier à bas carbone, est une perspective d'étude à la fois pour améliorer les propriétés des substrats d'acier et pour augmenter les taux de joints spéciaux dans le revêtements de zinc au moyen de traitement thermomécanique sous champ magnétique intense.

### **Study of the Grain boundaries.**

The symmetrical or asymmetrical skin-pass of the zinc coatings play an important role in the improvement of the mechanical properties, as the deformation achieved by skin-pass creates (coherent) domains that are smaller than the grain size. The textures obtained were modified by the skin-pass. If textures play an important role in cracking resistance, the grain boundary properties are generally associated too. This is why we were interested in the study of the grain boundaries, in particular in the special grain boundaries (Coincident Site Lattice, CSL), in relation to the deformation of a zinc coating subjected to uniaxial stress loading.

This chapter will try to highlight the role of various parameters such as grain boundary characteristics (special or random) and the orientation of the grain boundary plane with respect to the uniaxial stress direction. In the case of the zinc coatings, solidification involves a growth of columnar grains. The assumption may thus be made that the grain boundary plane is always vertical, i.e. perpendicular to the sheet plane and that a slight possible deviation from vertical will be neglected.

On the fringes of this work which is directed to rather industrial problems, the table of the CSL could be calculated according to energetic criteria and compared with the table determined geometrically in this chapter. This table, calculated by molecular dynamics (presented in the appendices), shows a good agreement between the two methods.

The second part of this chapter, which relates to the influence of magnetic fields on the characteristics of the grain boundaries during the phase transformation of a low carbon steel, is a study prospect aiming at improving the properties of the steel substrates and at increasing the special grain boundaries rates in the zinc coatings by means of thermomechanical treatment under high magnetic field.



**I. Les CSL dans un revêtement de zinc**

**The relationship between the fracture toughness and grain boundary characteristics in hot-dip galvanized zinc coatings**

G. Vincent<sup>a</sup>, N. Bonasso<sup>a</sup>, J. S. Lecomte<sup>a</sup>, B. Colinet<sup>b</sup>, B. Gay<sup>c</sup>, C. Esling<sup>a\*</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire d'Etude des Textures et Application aux Matériaux, CNRS UMR 7078, ISGMP, Université de Metz, F-57012 Metz Cedex 1, France.

<sup>b</sup> Recherche et Développement de Cockerill Sambre, Groupe Arcelor, Campus Universitaire de Sart Tillmann, B-4000 Liège, Belgique.

<sup>c</sup> Umicore Recherche, Kasteelstraat 7, B-2250 Olen, Belgique

\* *Corresponding author : C. Esling, Laboratoire d'Étude des Textures et Application aux Matériaux, CNRS UMR 7078, ISGMP, Université de Metz, F-57012 Metz Cedex 1, France  
e-mail : [esling@letam.sciences.univ-metz.fr](mailto:esling@letam.sciences.univ-metz.fr)*

Keywords : Zinc, Galvanized sheet, Intergranular fracture, Grain Boundary, CSL, In situ Tensile Test.

**Abstract.**

This publication presents an experimental study on the relation between the grain boundary characteristics and the intergranular cracking resistance in a hot dip zinc coating. The cracking was studied using *in situ* tensile tests in a scanning electron microscope on small tensile samples of a hot dip galvanized steel sheet. *In situ* testing offered a series of advantages like monitoring the very early stage and the kinematical evolution of cracking without unloading, or making micrographs and OIM imaging on the same area of the tensile sample. The grain boundaries were classified into random and special boundaries (respectively Low angle boundaries and Coincidence site lattice - CSL boundaries). These special boundaries which account for 3.5% of the whole boundaries clearly show better cracking resistance than the random boundaries. The only special boundaries which present cracking failure are in an orientation with their normal direction close to the tensile direction, i.e. submitted to a maximum effective stress. The grain boundaries characteristics are obtained from EBSD individual orientation measurements.

## 1. Introduction.

Zinc coatings are anti-corrosion protective through cathodic protection. Hot dip galvanizing is the most current coating process [1]. Solidification cracks may appear in the zinc layer during its solidification on the steel substrate [2]. However the most significant cracking occurs at the later working of the material. According to whether the material is loaded in uniaxial tension – as in this study - or in biaxial expansion, the main cracking type is respectively intergranular or intragranular (cleavage) [3, 4]. It is well established that the grain boundary (GB) properties depend on the GB type, both in cubic [5, 6] and hexagonal materials [7] The cracking resistance of special GBs has also been studied by percolation modeling [8]. The aim of the present work is to study the relation between intergranular cracking and the distribution of GB types in a polycrystalline zinc layer by in situ uniaxial tensile tests in the chamber of a scanning electron microscope.

## 2. Experimental procedure.

### 2.1 Material used.

The zinc coating studied has been prepared in a galvanizing simulator with a zinc bath containing 0.3% Al in weight. The industrial hot dip process is simulated in controlled atmosphere. Before entering the simulator, the steel substrate is pickled with hydrochloric acid (HCl) at 60°C to remove the native superficial rust layer. It is then quickly introduced in the simulator to avoid any pollution by atmospheric gases. Then it is fixed at the end of a sample rod where it is annealed for 45 s at 700°C before being set at 465°C, the inlet temperature of the zinc bath. The sample is dipped for 3 s in the zinc bath using the sample rod. It is dried in a nitrogen flow to control the final coating thickness and cooled down.. The so obtained zinc coating (Fig. 1(a)) has a 10  $\mu\text{m}$  thickness and a 60  $\mu\text{m}$  average grain size (Fig. 1(b)).

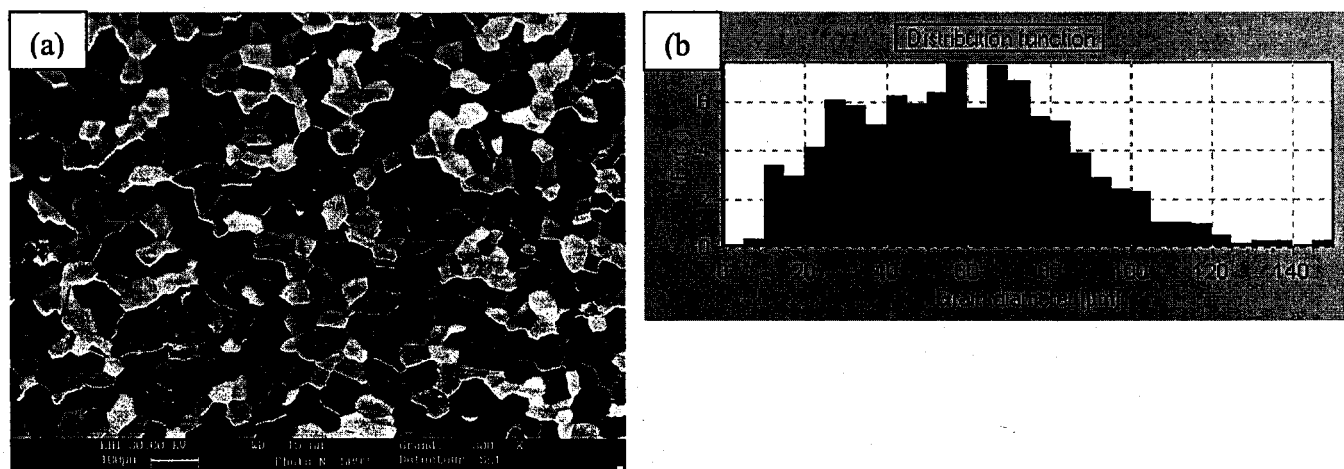


Fig. 1: (a) SEM microstructure of the 10  $\mu\text{m}$ -thick zinc coating observed after Finkeldey-solution etching (b) Grain size distribution (for a total of 1730 grains) in a (2.5 X 2)  $\text{mm}^2$  area of the galvanized zinc coating. The mean grain size is 58  $\mu\text{m}$ .

According to the specific grain size, we established the cartography of a (2.5 X 2) mm<sup>2</sup> area representative to the sample in the SEM. The orientation and misorientations statistics of the zinc grains were determined before deformation. The aim of these statistics is to establish the correlation between the cracks observed in the SEM and the misorientations across the grain boundaries or grain boundary types obtained by EBSD.

### 2.2 *In situ* tensile tests.

To study the deformation behavior of the coating, and more specifically intergranular cracking, we machined tensile specimens out of the sheet. These specimens - of small size (40 X 6 mm<sup>2</sup>) - were placed in the tensile testing machine MT100 of trade mark FONDIS which is used for the *in situ* mechanical testing in the SEM (LEICA 440). The tensile machine is used as sample holder the tensile direction being parallel to the rolling direction. In addition it is equipped with a force meter and an incremental displacement transducer of the traverse glide, interfaced with a PC which records and plots the "Force – Displacement" curve. The cracks generated by the deformation were observed in the SEM.

### 2.3 Texture determination.

The studied zinc coating, of hexagonal compact (hcp) structure, has a strong anisotropy. The distribution of grain misorientation is, to a large extent, a direct consequence of the distribution of grain orientations, i.e. of the crystallographic texture [9]. There is thus certainly a relation between texture and the cracking resistance of the galvanized coating [10]. To grasp this relation, we characterized the coating on various scales.

A first approach consists in analyzing the global texture of the coating by polycrystalline X-ray diffraction. The pole figures (PFs) were measured with a X-ray diffractometer using the Co K $\alpha$  line ( $\lambda_{Co} = 0.1789$  nm) and an Fe filter from the incomplete (00.2), (10.0), (10.1) and (10.2) PFs measured up to a maximum 80° tilt, the orientation density function ODF and the complete PFs figures were obtained by the harmonic method in Bunge's formalism [11]. At the microscopic scale, in order to study the local orientations and misorientations across the grain boundaries of the zinc crystallites, we chose to analyze in the SEM the tensile-samples in the as-received state before deformation, then after successively 5% and 7% of tensile elongation. The EBSD orientation mappings were carried out on the same area - selected on the sample prior to deformation - which comprises a population of 1730 individual grains and 3721 grain boundaries.

## 3. Near coincident cells for hexagonal crystals.

Grain boundaries are generally classified into random GBs and special GBs. This latter category comprises the low angle boundaries  $\Sigma 1$  and the coincidence site lattice  $\Sigma i$  CSL boundaries. Various studies showed that these CSL boundaries show improved properties to an upper limit of the coincidence index set to  $i = 29$  in the case of cubic crystal symmetry [12, 13]. In the present study for hcp crystal symmetry, this corresponds to an upper limit of 28, so that we restricted the statistical study to the  $\Sigma i$  CSL for  $i = 1$  to 28. To visualize the geometry of the CSL lattice, one can think of two interpenetrating crystal lattices. These crystal lattices share a common node and are disorientated to each other by a rotation around an axis passing

through this common node. When the two lattices share at least one additional node, they have in fact a common super-lattice of coincidence. The value of  $\Sigma$  is defined by the ratio of the volume of the superlattice cell to the initial lattice cell. In polycrystals, misorientations across the CSL GBs generally present a deviation compared to the exact value resulting from the lattice geometry. Indeed intergranular dislocations appear systematically to decrease energy due to that deviation. The commonly accepted deviation criterion is that of Brandon (Eq. 1) [14].

$$v_m = v_0 \Sigma^{-\frac{1}{2}} \quad (\text{Equation 1})$$

where  $v_0$  is the angular limit to a subgrain boundary and  $v_m$  the angular limit corresponding to a  $\Sigma_i$  of order  $i$ . The angular limit for low angle boundaries  $\Sigma=1$  (identity) corresponding to the maximum angular deviation  $v_0$  was set to  $15^\circ$  for cubic crystal lattice. The angular deviation criterion for the CSL boundaries is not always applied in the original definition given by Brandon, but in alternatives, in particular for specific alloys [15]. We set the value  $v_0$  equal to  $10^\circ$  instead of the  $15^\circ$  generally adopted in the case of cubic symmetry [16] In the hexagonal crystalline system of zinc, a  $10^\circ$  rotation around the highest order A6 axis accounts for 1/6 of the corresponding asymmetric unit, just as in the cubic system a  $15^\circ$  rotation around the highest order A4 axis accounts for 1/6 of the corresponding asymmetric unit. It appeared that this choice of  $10^\circ$  led to more coherent results on the improved properties of the CSL GBs. Watanabe<sup>2</sup> suggested the subtle distinction between structure related and physical property related deviation criteria, and to insert the angular deviation from exact CSL misorientation of cracked CSL boundaries in a chart of Brandon type deviation curves for various  $v_0$  values (Fig. 2)

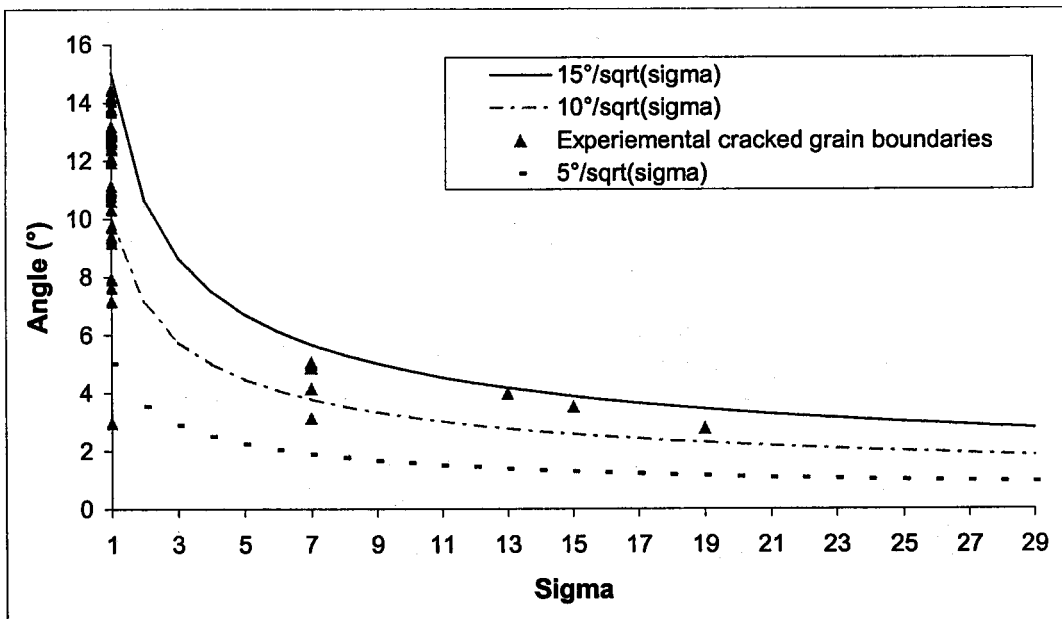


Fig. 2: Angular deviation from exact CSL misorientation of cracked CSL boundaries inserted in a chart of Brandon type deviation curves for various  $v_0$  values.

<sup>2</sup> Private communication by T. Watanabe

To draw up the list of the CSL GBs, we based on the table of quasi coincidence "near CSL" published by R. Bonnet et al.. [17], selecting reasonable rational approximants  $(n/m)^2$  ( $n$  and  $m$  integers) for the  $(c/a)^2 \approx 3,445$  ratio of the zinc hcp lattice. Table 1 gives the rotation axis  $\langle uvw \rangle$  and angle  $\theta_D$  of the lattice misorientation of the through the CSL boundary as well as the angular tolerance  $v_m$  calculated as indicated above, up to the coincidence order 25. We carried out independent calculations with an original algorithm provided by Liang Zuo<sup>3</sup> and completed this table by two additional CSL boundaries  $\Sigma 27^*$  and  $\Sigma 28^*$  obtained by this latter algorithm. The fully completed table (Table 1) has been taken into account when analyzing the experimental results.

Our program calculating the misorientations is based on previous work of L Zuo and A. Heinz and P. Neumann [18]. Starting from the EBSD orientation of two neighboring grains, it calculates their misorientation and to compares it with the characteristic CSL misorientations of zinc given in table 1. Among the symmetry equivalent misorientations, we choose by convention the axis – angle couple corresponding to the minimum misorientation angle.

$(n/m)^2$	$\Sigma$	uvw	$\theta_D$	$v_m$
Any	1	Any	0.00	10
Any	7	001	21.79	3.77
7/2	9	210	56.25	3.33
27/8	9	100	70.53	3.33
27/8	11	100	50.47	3.01
Any	13	001	27.80	2.77
7/2	13	100	85.59	2.77
24/7	15	100	86.18	2.58
21/8	15	100	29.93	2.58
7/2	15	210	29.93	2.58
7/2	15	210	86.18	2.58
27/8	15	210	78.46	2.58
7/2	17	100	49.68	2.42

Table 1: Near coincident site lattice relations for Zn giving the misorientation axis  $uvw$  and angle  $\theta_D$  of the lattices across the CSL  $\Sigma$ - boundary.

$(n/m)^2$	$\Sigma$	uvw	$\theta_D$	$v_m$
27/8	17	100	86.62	2.42
Any	19	001	13.17	2.29
27/8	19	100	26.53	2.29
7/2	21	310	70.53	2.18
27/8	21	210	44.41	2.18
17/5	22	210	56.25	2.13
7/2	23	100	34.30	2.08
7/2	23	210	77.44	2.08
27/8	23	18 9 2	79.98	2.08
7/2	25	210	63.90	2.00
27/8	25	310	63.89	2.00
27/8	27 *	100	38.94	1.92
69/20	28 *	100	49.99	1.88

<sup>3</sup> Private communication by L. Zuo

The calculation program uses two reference frames : a macroscopic frame related to the sheet and a microscopic reference mark related to each individual grain. The rotation mapping the microscopic to the macroscopic reference frame can be parameterized, for example, by the Euler matrix  $M_{ij}$  and the Euler angles ( $\varphi_1, \Phi, \varphi_2$ ) (Eq. 2).

$$M_{ij} = \begin{bmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} \\ a_{21} & a_{22} & a_{23} \\ a_{31} & a_{32} & a_{33} \end{bmatrix} \quad (\text{Equation 2})$$

$$\begin{aligned} a_{11} &= \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 - \sin \varphi_1 \sin \varphi_2 \cos \Phi \\ a_{12} &= \sin \varphi_1 \cos \varphi_2 + \cos \varphi_1 \sin \varphi_2 \cos \Phi \\ a_{13} &= \sin \varphi_2 \sin \Phi \\ a_{21} &= -\cos \varphi_1 \sin \varphi_2 - \sin \varphi_1 \cos \varphi_2 \cos \Phi \\ a_{22} &= -\sin \varphi_1 \sin \varphi_2 + \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \cos \Phi \\ a_{23} &= \cos \varphi_2 \sin \Phi \\ a_{31} &= \sin \varphi_1 \sin \Phi \\ a_{32} &= -\cos \varphi_1 \sin \Phi \\ a_{33} &= \cos \Phi \end{aligned}$$

The misorientation between two grains - or between the two reference frames linked to them - can be defined in the following way [18] (Eq. 3) :

$$\Delta G_{ij} = g_j \cdot g_i^{-1} = g_j \cdot {}^t g_i \quad (\text{Equation 3})$$

where  $g_i$  and  $g_j$  represent the respective orientations of the two grains.

The matrix representation of the misorientation  $\Delta G_{ij}$  is not unique because of the crystal symmetry. It is thus necessary to introduce two symmetry operators  $S^k$  and  $S^l$  [19] into the expression (Eq. 3) of misorientation  $\Delta G_{ij}$  between the two crystals :

$$\Delta g_{ij} = S^k \Delta G_{ij} {}^t S^l \quad (\text{Equation 4})$$

The misorientation angle  $\omega_G$  is deduced straight forwardly from the trace  $\text{tr}(\Delta G)$  of this matrix by :

$$\cos(\omega_{ij}) = \frac{|\text{tr}(\Delta g_{ij}) - 1|}{2} \quad (\text{Equation 5})$$

Among the possible misorientations  $\Delta G_{ij}$  taking into account the multiplicity due to the crystal symmetries, the selection criterion will be the minimization of the misorientation angle  $\omega_{\Delta G}$ . This minimum angle will be compared with the theoretical misorientations angles provided by the CSL misorientation table.

The  $v_m$  criterion (derived from the modified Brandon criterion) is introduced as tolerance on the misorientation angle, in particular to take into account uncertainties related to individual orientations measurements by EBSD. The deviation angle is calculated in the same way as before (Eq.s 6 and 7). The CSL misorientation matrix,  $M_{CSL}$ , is calculated starting from the theoretical misorientation angle  $\theta_D$  and axis  $\langle uvw \rangle_{CSL}$  of the corresponding CSL in Table 1.

$$M_D = \Delta g_{ij} \cdot M_{CSL}^{-1} = \Delta g_{ij} \cdot M_{CSL}^T \quad (\text{Equation 6})$$

$$\cos(\gamma_D) = \frac{[tr(M_D) - 1]}{2} \quad (\text{Equation 7})$$

The condition for a grain boundary being counted as a coincidence boundary is that the deviation angle  $\gamma_D$  be lower than the limit value  $v_m$  set by the criterion :

$$\gamma_D \leq v_m \quad (\text{Equation 8})$$

The program then makes it possible to draw a cartography of the grain boundary misorientations by assigning a particular color to each CSL boundary type. In the following, we will regroup the grain boundaries with the same index  $i$  in CSL families denoted  $\Sigma_i$ .

## 4. Results and discussion

### 4.1 Study of the orientations and misorientations of the grains.

The global texture of the studied coating is a  $\langle c \rangle$  axis fiber texture, the average orientation of the axes  $\langle c \rangle$  being normal to sheet, with an angular spread of  $15^\circ$  to the normal direction DN (Fig. 3(a, b, c)).

The global texture does not give account for the local misorientation characteristics of misorientation between neighboring grains. Only determination of local texture gives access to the determination of the misorientation between grains.

Thus the orientation map (Fig. 4) represents the material at the microscopic scale of the grains. On this map (00.2) grains are mainly of dark colors, i.e. their  $\langle c \rangle$  axes are perpendicular to the sheet plane, while the white zones of the map could not be indexed by EBSD. The grains boundaries pictured in white color are low angle boundaries of misorientation smaller than  $10^\circ$ . The various levels of gray confirm that the distribution of the orientations by rotation around the normal direction is homogeneous, which confirms a complete fiber texture with  $\langle c \rangle$  axis parallel to ND.

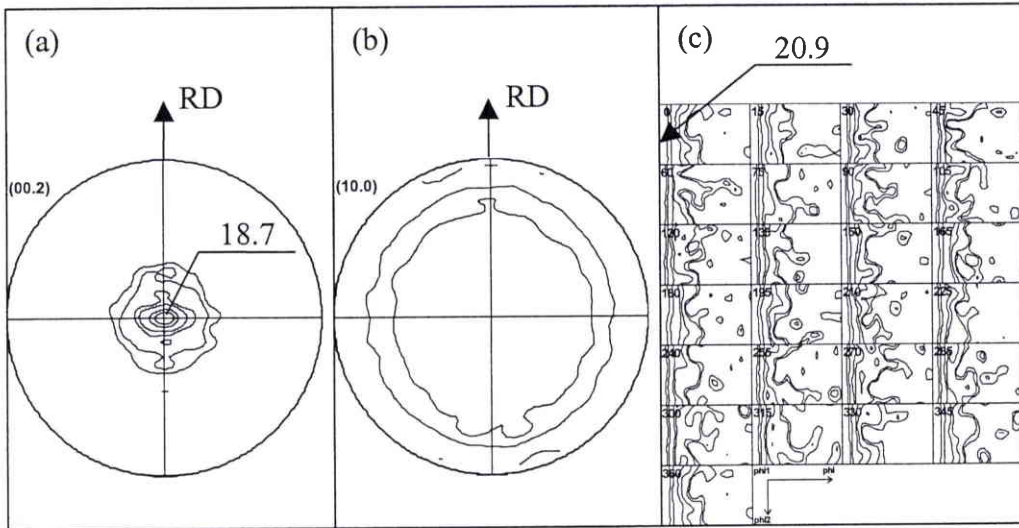


Fig. 3 : (a) Calculated (00.2), (b) (10.0) pole figures and (c) Orientation Density Function (ODF) of the hot-dip galvanized zinc coating.

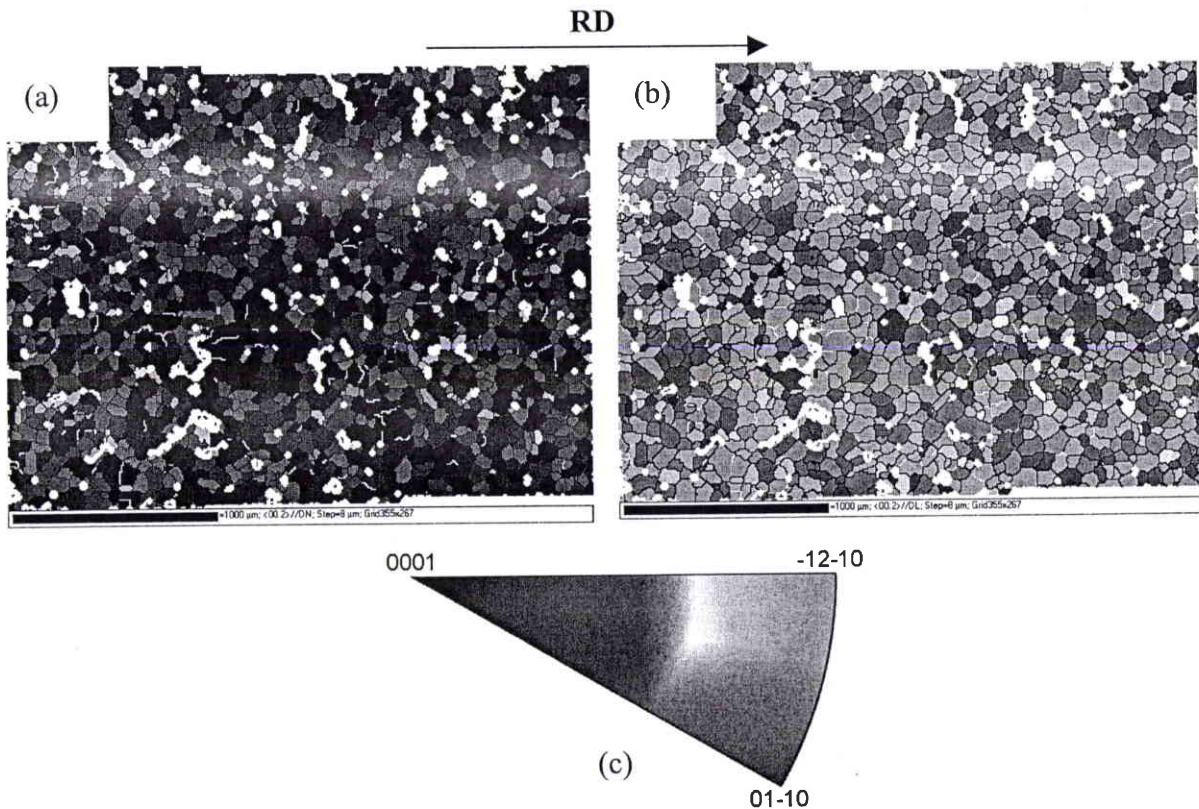


Fig. 4 OIM map of the hot-dip galvanized zinc coating. The grains are colored according to (a) orientation of the ND direction in the standard triangle and (b) orientation of the RD direction in the standard triangle.



In view of these results, a significant number of special grain boundaries can be expected. Indeed it was confirmed, as seems reasonable, that a relatively marked fiber texture induces a significant number of misorientations whose axis is parallel to the fiber axis [20]. A fraction of these misorientations correspond to CSL boundaries with  $\langle c \rangle$  as misorientation axis. These latter CSL boundaries as well as those obtained by misorientation around other crystallographic axes are identified – within the limits of the angular tolerance  $v_m$  - by comparison with the  $\Sigma$  boundaries listed in table 1.

It is then easy to identify and to classify the grain boundaries into random and various CSL boundaries. Fig. 5 presents part of the orientation micrograph on which the CSL boundaries have been identified and marked.

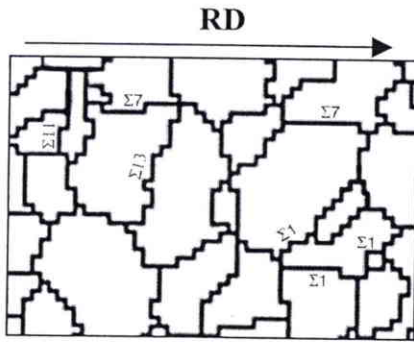


Fig. 5: OIM micrograph of the hot-dip galvanized zinc coating. Coincident boundaries ( $\Sigma \leq 28$ ) are selected according to the Brandon-type criterion Eq. 1 with  $v_0=10^\circ$ . Non-labeled boundaries are random grain boundaries.

According to Table 2, 2.71% of the boundaries are low angle  $\Sigma 1$  boundaries, 1% are coincident CSL boundaries ( $\Sigma 7$  to  $\Sigma 28$ ) and 96.29% of random grain boundaries. Among the coincident boundaries, the  $\Sigma 7$  and  $\Sigma 19$  classes are in a majority. For this galvanized sheet the frequencies of the coincident boundaries in the zinc coating are definitely smaller than those determined by Kim and Al in a polycrystal of NiAl [21] ( $\Sigma 1=17\%$ ,  $\Sigma 3=1.1\%$ ,  $\Sigma 5=1.8\%$ ,  $\Sigma 7=0.4\% \dots$ ). The variation observed can be explained by the lattice type (here hexagonal) and by the restriction of the angular tolerance which results from the restriction of Brandon's criterion.

It might be interesting to standardize the rates of special boundaries given in this textured sample by scaling them to the respective rates of special boundaries obtained for a random distribution of crystals of hexagonal symmetry. The distributions of misorientations for a random texture are generated according to the method suggested by Zuo and Esling [22] using two triplets of random numbers ( $r_1$  to  $r_6$ ) specifying sets of Euler angles for couples of grains A and B (Eq. 9) :

$$\begin{aligned}
 \varphi_1^A &= 2 r_1 \pi; & \phi^A &= \cos^{-1}(1-2 r_2); & \varphi_2^A &= 2 r_3 \pi; \\
 \varphi_1^B &= 2 r_4 \pi; & \phi^B &= \cos^{-1}(1-2 r_5); & \varphi_2^B &= 2 r_6 \pi;
 \end{aligned}
 \quad (\text{Equation 9})$$

	Type of $\Sigma$ Boundary	GBs in the general population (in numbers)	GBs in the general population (in %)	GBs at crack-sites (in numbers)	GBs at crack-sites (in %)	Relative GBs at crack-sites (in %)
Low-Angle	$\Sigma 1$	101	2.71	8	2.0	7.9
Large-Angle	$\Sigma 7$	14	0.38	1	0.2	7.1
	$\Sigma 9$	3	0.08	1	0.2	33.3
	$\Sigma 11$	3	0.08	0	0	0
	$\Sigma 13$	3	0.08	0	0	0
	$\Sigma 15$	3	0.08	0	0	0
	$\Sigma 17$	1	0.03	0	0	0
	$\Sigma 19$	8	0.21	0	0	0
	$\Sigma 21$	1	0.03	0	0	0
	$\Sigma 22$	0	0	0	0	0
	$\Sigma 23$	1	0.03	0	0	0
	$\Sigma 25$	0	0	0	0	0
	$\Sigma 27$	0	0	0	0	0
	$\Sigma 28$	0	0	0	0	0
		$> \Sigma 28$	3583	96.29	394	97.8
total		3721	100.00	404	100.0	10.9

Table 2: Distribution of the grain boundaries in various types : low-angle and large-angle boundaries, the latter being subdivided into random and CSL boundaries.

Fig. 6 confirms that the distribution of misorientations is strongly influenced by the texture type. We calculated the theoretical distribution of misorientations for a random polycrystal built with crystals of hexagonal symmetry, distribution which had been published in the case of crystals of cubic symmetry [23]. The difference between the two distributions for the random and textured sample is striking. The experimental basal texture presents a sharp maximum localized at  $30^\circ$  whereas the theoretical distribution of misorientations is a monotonous increasing curve until its maximum obtained for a misorientation of  $93.84^\circ$ . This latter value is the maximum possible misorientation in the fundamental asymmetric unit for misorientations of crystals of hexagonal symmetry.

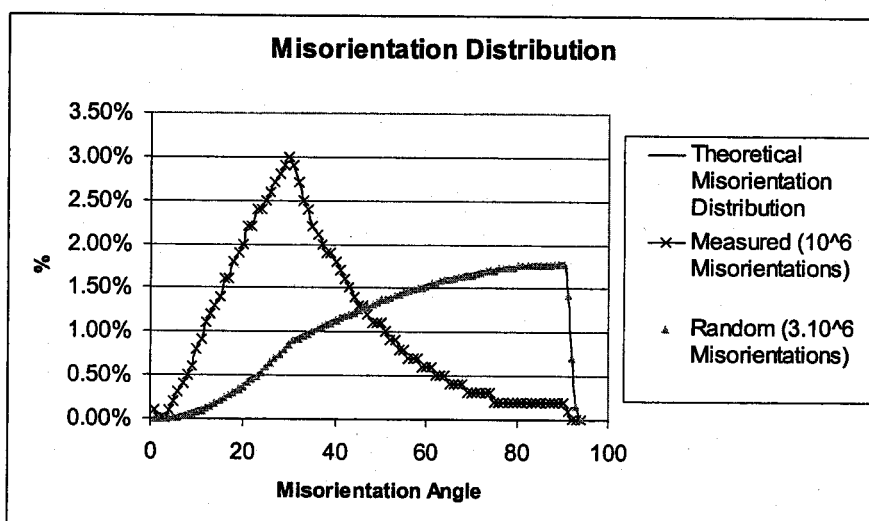


Fig. 6: Distribution of misorientations for a random texture of hexagonal crystal symmetry generated from a statistical sample including 3.10<sup>6</sup> grain boundaries.

The rates of special boundaries for a random distribution are given in table 3. This table also reports the ratio  $F_{rel}$  of the actually measured frequencies of special boundaries to those calculated from the random distribution (Eq. 10) :

$$F_{rel.} = \frac{F_{\Sigma exp}}{F_{\Sigma isotrope}} \quad (\text{Equation 10})$$

Sigma	1	7	9	11	13	15	17	19
Isotrope Hex (%)	0.33	0.038	0.18	0.027	0.025	0.22	0.047	0.039
$F_{rel.}$	8.21	10	0.44	2.96	3.2	0.36	0.63	5.38

Sigma	21	22	23	25	27	28	>28
Isotrope Hex (%)	0.085	0.040	0.089	0.068	0.014	0.014	98.8
$F_{rel.}$	0.35	0	0.33	0	0	0	0.97

Table 3: Frequency of CSL grain boundaries for a random texture of hexagonal crystalline symmetry and relative frequency (scaled to random)  $F_{rel.}$  of CSL grain boundaries in the sample with basal texture.

As a general rule, coincident CSL boundaries present an improved cracking resistance as compared to the random grain boundaries. The following paragraph will show that the orientation of the boundary compared to the direction of uniaxial traction i.e. the intensity of the effective normal stress component on the grain boundary is very significant in the cracking behavior [8].

4.3 Correlation between the cracking behavior and the effective normal stress component.

Each grain boundary was classified with respect to the angle  $\alpha$  between the normal  $\langle n \rangle$  to the grain boundary plane with the uniaxial tensile direction  $\langle TD \rangle$  (Fig. 9). Nine angle classes  $\alpha$  were defined by ranges of  $10^\circ$  width, from  $0^\circ$  to  $10^\circ$ , from  $10^\circ$  to  $20^\circ$  etc. For simple symmetry considerations, the asymmetric unit of variation of this angle ranges in the interval from  $0^\circ$  to  $90^\circ$ .

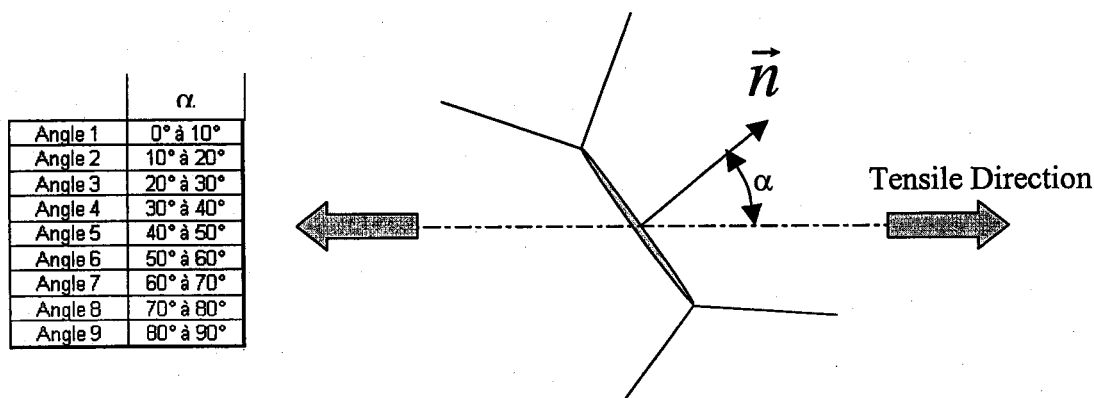


Fig. 9: Orientation of the grain boundary plane with respect to the uniaxial tensile direction. Nine angle classes  $\alpha$  were defined from  $10^\circ$  to  $10^\circ$  in the angular range from  $0^\circ$  to  $90^\circ$ .

Fig. 10 gives the distribution of the grain boundaries according to the angle  $\alpha$ . There are two maximums in the ranges  $0-10^\circ$  and  $80-90^\circ$ , which corresponds respectively to grain boundaries perpendicular and parallel to the tensile direction, i.e. to the rolling direction of the steel substrate. This can be explained by the orthorhombic symmetry (or rectangular in plane symmetry) of the rolled sheet steel, as well as by effects of the sheet edges on the cooling conditions of the zinc layer. Between these two maximums, the orientations of the grain boundaries normals are distributed according to a Gaussian centered on  $45^\circ$ . That also shows that, as could be expect [26], that the working process (rolling) of the substrate influences the crystallization of the coating during cooling by inducing a characteristic distribution of the orientations of the grain boundaries planes.

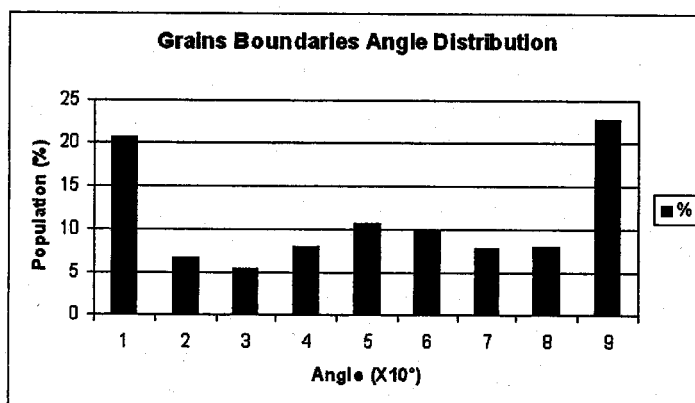


Fig. 10: Distribution of the grain boundary orientations according to the angle  $\alpha$  defined by the normal to the grain boundary plane and the direction of uniaxial tension.

Distributions of the random grain boundaries (Fig. 11(b)) and of coincident CSL boundaries (Fig. 11(a)) according to the angle  $\alpha$  present the same symmetry characteristics that have just been described for the whole set of all the grain boundaries. It appears that the percentage of cracked boundaries by orientation class is a monotonously decreasing function of the angle  $\alpha$  for the random boundaries. Oppositely, in the case of CSL boundaries the decrease with the angle  $\alpha$  is dramatic until the class 20-30°. Beyond this orientation class no CSL grain boundary cracks because their resistance is high enough for the effective normal critical crack stress never be reached. These experimental results confirm the interest of the theoretical and numerical model of intergranular crack propagation proposed by Wang et al. [8].

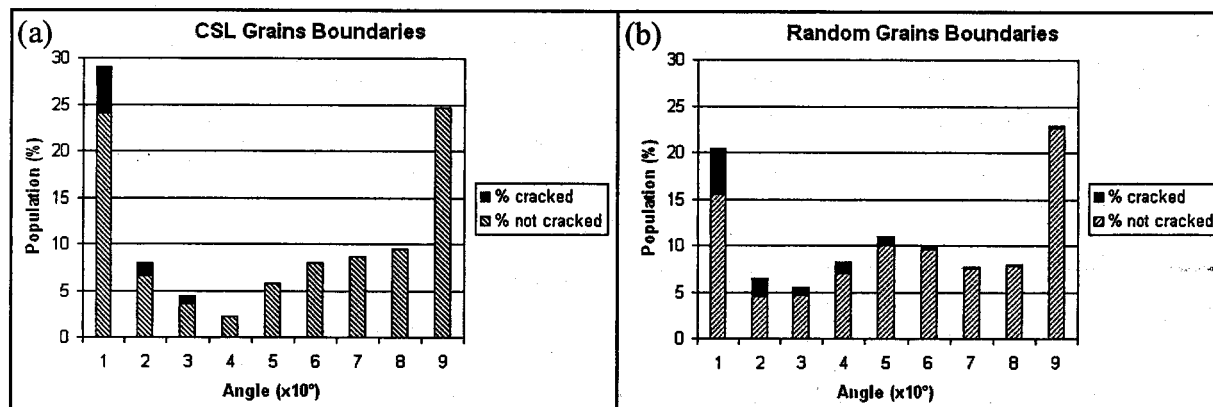


Fig. 11: Distribution of the orientations of (a) CSL type grain boundaries (b) random grain boundaries. The orientations are defined by the angle  $\alpha$  between the direction normal to the boundary plane and the direction of uniaxial traction. We also specified the percentage of cracked grain boundaries for each orientation class.

The analysis of cracking shows that the orientation class  $0^\circ$ - $10^\circ$  (Angle 1 on Fig. 11(a, b)) remains extremely unfavorable whatever the grain boundary type. The cracking could not be observed continuously during the tensile test, but only at deformation rates amounting respectively to 5% and 7%. Thus it was not possible to observe the first stages of cracking. The critical cracking stress for the first grain boundaries to be cracked had then undoubtedly been exceeded. These first cracks were then propagated towards other grain boundaries (including  $\Sigma$  boundaries) stressed by local fields raised because of the stress redistribution within material as a consequence of the first cracks [8]. Oppositely when we consider all the other orientation classes from  $10^\circ$  to  $90^\circ$ , it appears that our results clearly confirm work performed on cubic crystals: CSL type boundaries prove an improved cracking resistance as compared to random boundaries. Even though this result was established for cubic crystals, there did not exist, to our knowledge, a similar work on hexagonal crystals. This result will also complement a study of the grain boundaries of a polycrystal of zinc deformed at high temperature [27].

## **5. Conclusion**

We studied the cracking resistance of the various types of grain boundaries in a galvanized zinc coating. For that we performed uniaxial tensile tests in situ in a SEM to establish a correlation between intergranular cracking and grain boundary characteristics. We showed that CSL coincident boundaries are more resistant to cracking than random boundaries.

The modification of Brandon's criterion (restriction of the deviation angle from  $15^\circ$  for cubic crystals to  $10^\circ$  for hexagonal crystals) seems to be a judicious and coherent choice which makes it possible to restrict the tolerance on the selection criterion for the CSL boundaries. The few CSL cracking boundaries correspond exclusively to the orientation class  $\alpha$ . For the latter grain boundaries the angle of the grain boundary normal to the tensile direction ranges between  $0$  and  $30^\circ$ , i.e. is directed almost perpendicular to the tensile direction. At this stage, it would seem that the critical cracking stress has been locally exceeded, in particular because of a possible redistribution of the local stresses following the cracking of most brittle grain boundaries.

This is why to minimize the damage, it would be useful to increase the frequency of CSL coincident boundaries obtained right at the galvanizing process. It was shown in the literature that a heat treatment carried out on cubic materials increased considerably the fraction of the coincidence boundaries [19]. It should be thus possible on our alloy to increase the frequency of CSL coincident boundaries by an optimized heat treatment, taking into account the relatively low melting point of zinc ( $420^\circ$ ) and avoiding increase in the grain size that would have a prejudicial effect.

References :

- [1] K.J. Dunham, *Metal Finishing*, 100 (2002), 20.
- [2] E. Tzimas, G. Papadimitriou, *Technology*, 145 (2001), 176.
- [3] S. Lazik, C. Esling, M.J. Philippe, J. Wegria, M. Dubois, *TMS*, Vol. 28 (1996), 35-45.
- [4] R. Parisot, S. Forest, A.F. Gourgues, A. Pineau, D. Mareuse, *Computational Materials Science*, 19 (2000), 189.
- [5] L. C. Lim, T Watanabe, *Acta Metall Mater* 38 (1990), 2507.
- [6] T. Watanabe, S. Tsurekawa, *Acta Metall Mater* 47 (1999), 4171.
- [7] T. Watanabe, M. Yamada, S. Shima and S. Karashima, *Phil Mag. A* (1979), Vol 40, No. 5, 667.
- [8] G. Wang, L. Zuo, C. Esling, *Philosophical Magazine A* 12 (2002), 2499.
- [9] I. Beaujean, Ph. D. Thesis, University of Metz, Metz, (1993).
- [10] S. Gaignard, S. Lazik, J. Lietzau, J. Wegria, M. Dubois, M.J. Philippe, C. Esling, *TMS*, Vol. 34 (1999), 147-157.
- [11] H.J. Bunge, *Texture Analysis in Material Science*, Cuvillier Verlag Göttingen (1993).
- [12] G. Palumbo, K.T. Aust, E.M. Lehockey, U. Erb and P. Lin, *Scripta Mat.* 38, No 11 (1998), 1685.
- [13] V.Y. Gertsman, A.P. Zhilyaev, J.A. Szpunar, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 5 (1997), 35.
- [14] D.G. Brandon, *Acta Metall.* 14 (1966), 1479.
- [15] Y. Pan, B.L. Adams, T. Olson, N. Panayotou, *Acta Metall.* 44 (1996), 4685.
- [16] W.T. Read, W. Shockley, *Physical Review* 78 (1950), 275.
- [17] R. Bonnet, E. Cousineau and D.H. Warrington, *Acta Cryst* A37 (1981), 184-189.
- [18] A. Heinz, P. Neumann, *Acta Cryst.* A47 (1991), 780.
- [19] M. Humbert, F. Wagner, H. Moustafid, C. Esling, *J Appl. Cryst.* 28 (1995), 571.
- [20] L. Zuo, T. Watanabe and C. Esling, *Z Metallkde* 85 (1994), 554.
- [21] T. Kim, K.T. Hong, K.S. Lee, *Intermetallics* 11 (2003), 33.
- [22] L. Zuo and C. Esling, *Scripta Metall and Mater*, Vol. 32, No. 6, (1995), 937.
- [23] J.K. Mackenzie, M.J. Thomson, *Biometrika* 44, 205 (1957).
- [24] D. Jaffrey, J.D. Browne, T.J. Howard, *Metallurgical transactions B*, 11 (1980), 631.
- [25] J.Q. Known, M. Demura, T. Hirano, *Acta Materialia* 51 (2003), 2505.
- [26] D.S. Lee, H.S. Ryoo, S.K. Hwang, *Materials Sciences and Engineering A354* (2003), 106.
- [27] T. Watanabe, S.I. Kimura and S. Karashima, *Phil Mag. A* (1984), Vol. 49, No. 6, 845.

## **II. Influence d'un champs magnétique sur la formation de CSL dans un acier**

### **The effects of thermal processing in a magnetic field on grain boundary characters of ferrite in a medium carbon steel**

Yudong Zhang<sup>a,b</sup>, Gregory Vincent<sup>b</sup>, Natanael Dewobroto<sup>b</sup>, Lionel Germain<sup>b</sup>, Xiang Zhao<sup>a</sup>, Liang Zuo<sup>a</sup>, Claude Esling<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Key Laboratory (Northeastern University), Ministry of Education, Shenyang 110004, P. R. China

<sup>b</sup> LETAM, CNRS-UMR 7078, University of Metz, Ile du Saulcy, 57045 Metz, France

**Abstract:** Effects of a magnetic field on low-angle misorientation distribution and CSL boundary occurrence in ferrite in 42CrMo steel during the austenite to ferrite and pearlite transformation were investigated. The results show that a magnetic field can considerably lower the frequency of low-angle misorientations in ferrite lamellae and raise the occurrence of  $\Sigma$  coincidence boundaries, especially  $\Sigma 3$  in ferrite. But no obvious effect on crystallographic orientation distribution, or texture, was detected.

**Keywords:** grain boundary; grain boundary character distribution (GBCD); coincidence site lattice (CSL); magnetic field; phase transformation.

### **1. Introduction**

Grain Boundary Design, proposed by Watanabe [1,2], is an innovative concept to achieve property control of polycrystalline materials. Indeed, grain boundaries are an important factor that affects the properties of polycrystalline materials as recently investigated, for example, experimentally [3] and theoretically [4]. Since the 1980's, the introduction of a magnetic field, especially a high magnetic field, to control the Grain Boundary Character Distribution (GBCD) has aroused much attention. This effect was first investigated experimentally by magnetic annealing of cold-worked ferro-alloys [5-8]. The effects of magnetic field annealing include the enhancement of  $\{100\}$  recrystallization texture component [5], retardation of recrystallization and an increase in the CSL boundary frequency. Quite recently, Watanabe and coworkers [9] enlarged the research scope to include electrodeposited nanocrystalline nickel in order to develop new materials processing routes to control the grain boundary structure. Significant effects have been revealed [9]. Since grain boundary microstructure depends remarkably on materials processing [10], the attempt to apply high magnetic fields during the austenite to ferrite and then pearlite transformation and investigate the effect of



magnetic field on the GBCD that develops during this process may provide a new approach for microstructure modification.

Based on this consideration, hot-rolled 42CrMo steel was selected and treated with and without the application of a high magnetic field. The influence of the magnetic field on misorientation distribution and the GBCD in ferrite were investigated.

## **2. Experimental**

The material used in this study was 42CrMo steel with chemical composition (wt%) 0.38-0.45%C, 0.90-1.20%Cr, 0.15-0.25%Mo, 0.20-0.40%Si, 0.50-0.80%Mn,  $\leq 0.04\%$ P,  $\leq 0.04\%$ S and  $\leq 0.30\%$ Cu. Specimens of dimensions 20mm×10mm×2mm were cut from a hot-rolled rod with their longitudinal direction parallel to the hot-rolling direction. Heat treatments were carried out with a furnace installed in a 15T cryocooled superconducting magnet with a bore diameter of 52mm [11]. The specimens were kept in the central (zero magnetic force) region, with their longitudinal direction parallel to the magnetic field direction. The austenitization process was performed at 880°C for 33min ( $A_{c3}=780^\circ\text{C}$ ). The specimens were cooled at a rate of 10°C/min. in an external magnetic field of 14 Teslas. For comparison, the heat treatment was also carried out under the same heating and cooling conditions with no field applied.

The above treated specimens were further cut out along their longitudinal direction for optical microscopic and SEM observations and EBSD measurements. The morphologies of the as-treated microstructures were examined using optical and electronic (JSM-6500F SEM) microscopy. The EBSD technique was used to examine the misorientation distribution, GBCD and texture of the transformed proeutectoid and eutectoid ferrite. Orientation Imaging Microscopy (OIM) analysis was performed with the same FEG SEM equipped with HKL's Channel 5 software. The 'beam controlled' mode was applied with step sizes of 1 $\mu\text{m}$  and 0.15 $\mu\text{m}$ . The analyzed areas in each sample with the step size of 1 $\mu\text{m}$  covered more than 2000 ferrite grains.

## **3. Results**

Microstructures of the specimens treated without and with the magnetic field of 14 T are shown in Fig. 1. They are all composed of ferrite (bright areas) and pearlite (dark areas) that are nearly equiaxed. The only differences lie in their distributions. Without a field, ferrite grains and pearlite colonies are distributed almost randomly, while with a field, they are distributed in stripes along the direction of the magnetic field. This phenomenon has been analyzed elsewhere [12]. Figure 2 shows the lamellar structure of the pearlite obtained without and with the magnetic field. In each pearlite colony, ferrite (dark areas) and cementite (bright areas) lamellae are distributed alternately. In the magnetic field cooled specimen, the mean inter-lamellar spacing of ferrite and cementite is evidently larger than that obtained without field (see Fig. 2).

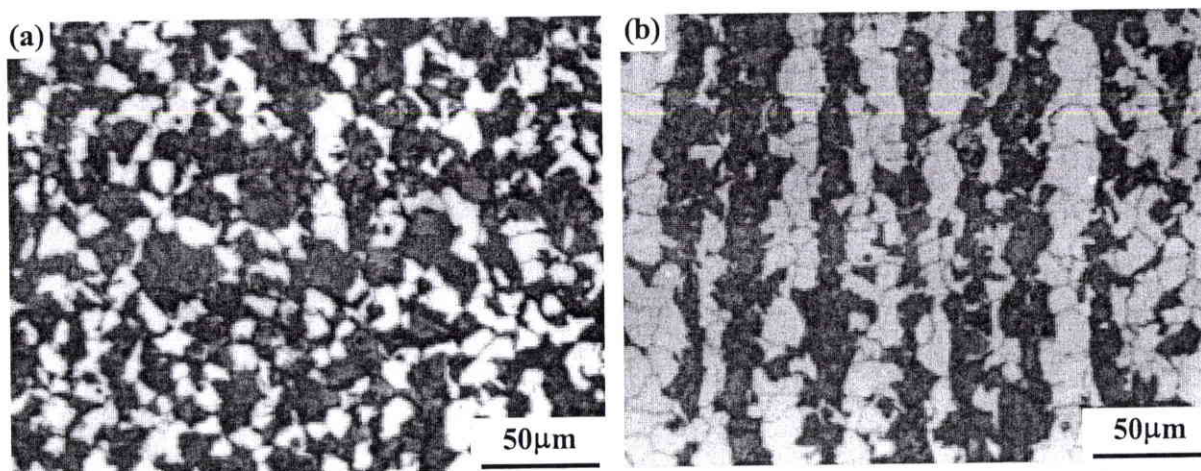


Fig. 1. Microstructures of specimens heated at 880°C for 33min and cooled at 10°C/min without (a) and with (b) the 14 T magnetic field. The hot-rolling direction and magnetic field direction are vertical.

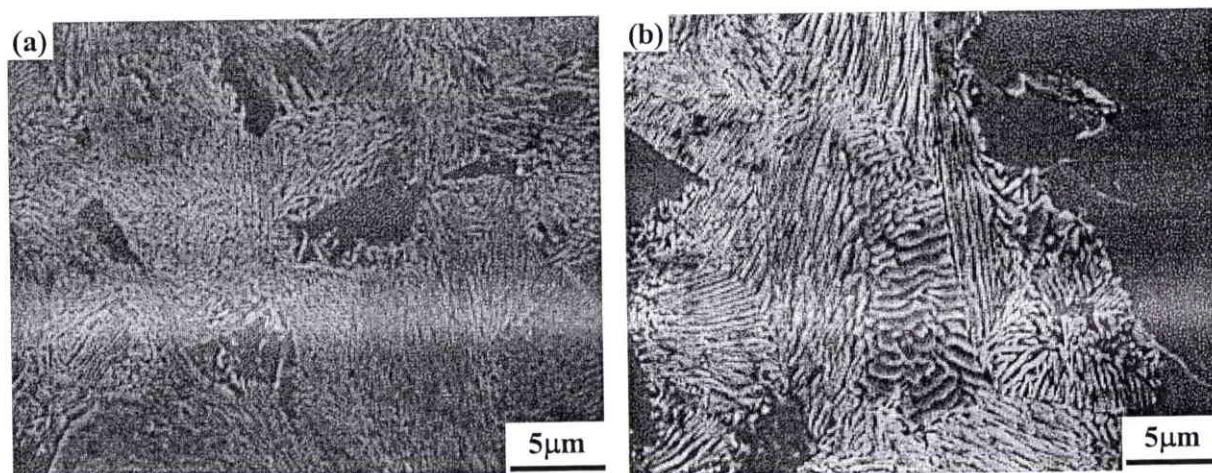


Fig. 2 SEM secondary electron micrographs of pearlite colonies obtained without (a) and with (b) the 14 T magnetic field. The hot-rolling direction and magnetic field direction are vertical.

The misorientation angle distribution of boundaries in the ferrite and the corresponding OIM maps of the specimens treated without and with the magnetic field are shown in Fig. 3 and Fig. 4, respectively. For comparison, the misorientation distribution of a randomly oriented polycrystal is also displayed in Fig. 3. It is seen that in Fig. 3, the frequency of low-angle misorientations ( $<15^\circ$ ) is considerably lower in the specimen cooled with the magnetic field. The locations of these low-angle boundaries (from  $1^\circ$  to  $15^\circ$ ) are displayed as thin black lines and the high-angle misorientations ( $>15^\circ$ ) are displayed as thick white lines in the OIM maps in Fig. 4. It is seen that most of these low-angle misorientations are congregated within clusters enclosed by high angle boundaries (thick white lines in the pictures). The zoom image in the top right corner in each map shows that the distribution of low-angle misorientation in each cluster is denser without a field than with a field. The lamellar structure in the pearlite colonies is not visible as the resolution of EBSD measurement is not high enough to identify cementite. Instead, each pearlite colony is simply identified as one ferrite

grain as all its ferrite lamellas have misorientations lower than  $15^\circ$ . Figure 5 shows the CSL boundary distribution in the specimens cooled without and with the magnetic field. For comparison, the frequencies of CSL grain boundaries in a random polycrystal [13] are also plotted. It is seen that the magnetic field can considerably increase the occurrence of low  $\Sigma$  ( $\Sigma 1 - \Sigma 29$ ) boundaries, especially the  $\Sigma 3$  boundaries. This finding is largely consistent with the results found in magnetic field annealed nanocrystalline nickel [9] and Fe-9at%Co alloy [6] by Watanabe and co-workers. The corresponding locations of  $\Sigma 3$  boundaries are shown with black lines in Fig. 6 and Fig. 7. Figure 6 shows that without a field, although the length of  $\Sigma 3$  boundaries are inhomogeneous, most are obviously shorter than that obtained with field. The high magnification map in Fig. 7 shows that these  $\Sigma 3$  boundaries are located along both equiaxed ferrite grain boundaries (indicated by the hollow arrow) and pearlite colony boundaries\* (indicated by the solid arrow).

The pole figures of the specimens treated with and without the field are shown in Fig. 8. It is seen that the crystallographic orientation of the two specimens are random despite the fact that the easiest magnetization direction of ferrite is  $\langle 001 \rangle$ .

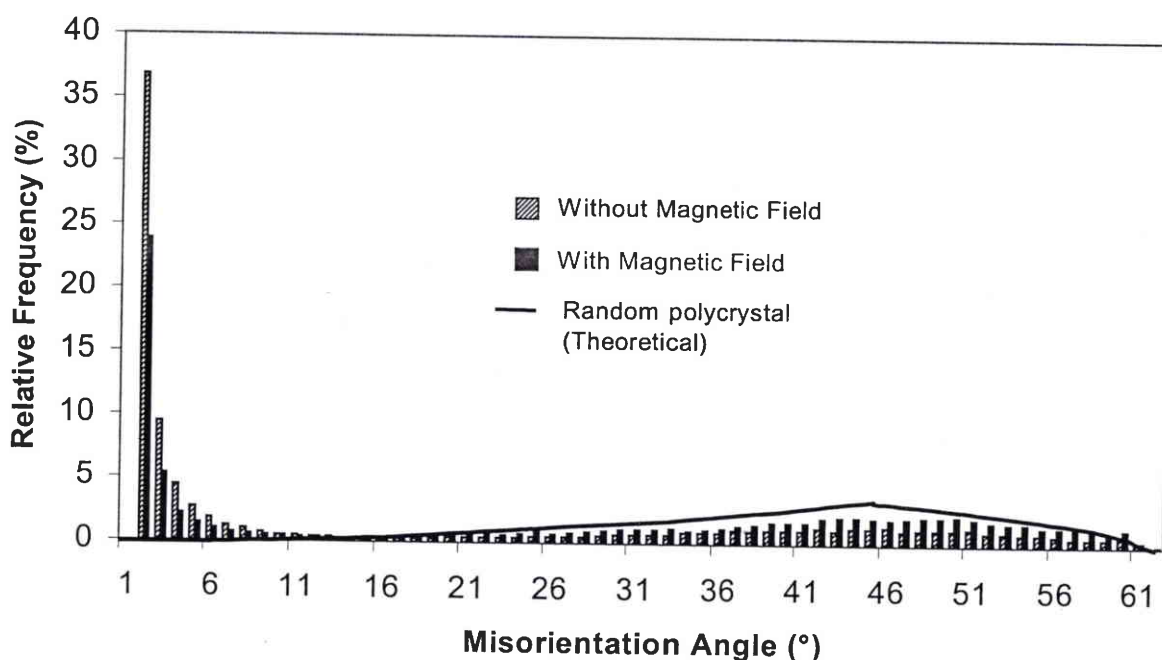


Fig. 3. Misorientation angle distribution of specimens heated at  $880^\circ\text{C}$  for 33min and cooled at  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  without and with the 14 T magnetic field.

\*Note: Although the lamellar cementite is not identified through indexing of the measured Kikuchi patterns, the band contrast of the OIM map obtained at small step size ( $0.15\mu\text{m}$ ) can display some parts of the lamellar structure of pearlite.

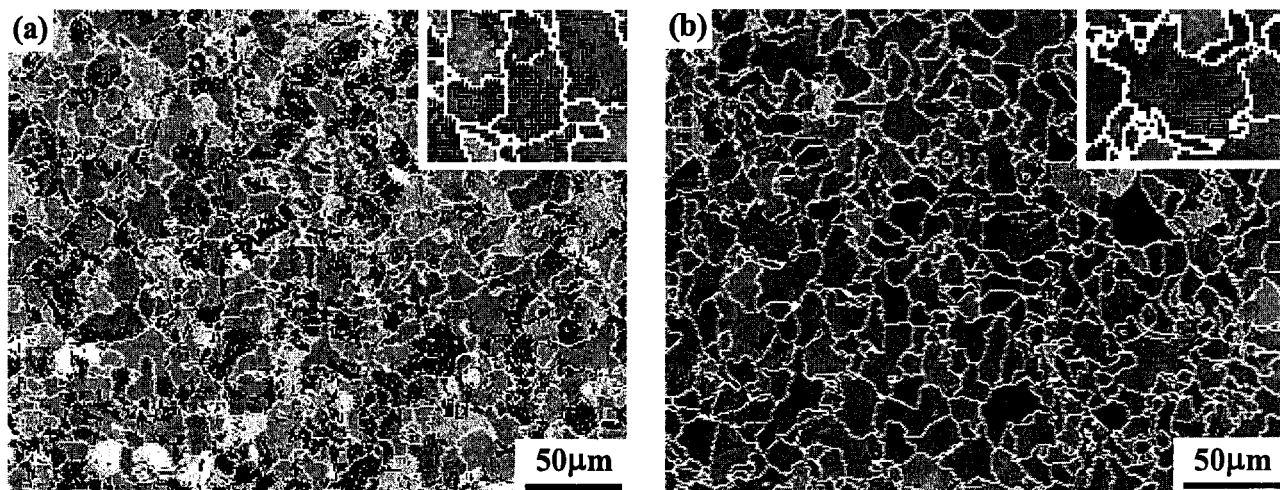


Fig. 4. OIM maps of specimens heated at 880°C for 33min and cooled at 10°C/min without (a) and with (b) the 14 T magnetic field. The hot-rolling direction and magnetic field direction are vertical. The zoom image in the right corner of each picture shows the detailed locations of low-angle (from 1° to 15°) and high-angle (>15°) misorientations. The magnification is twice that of the main map. Step size: 1µm.

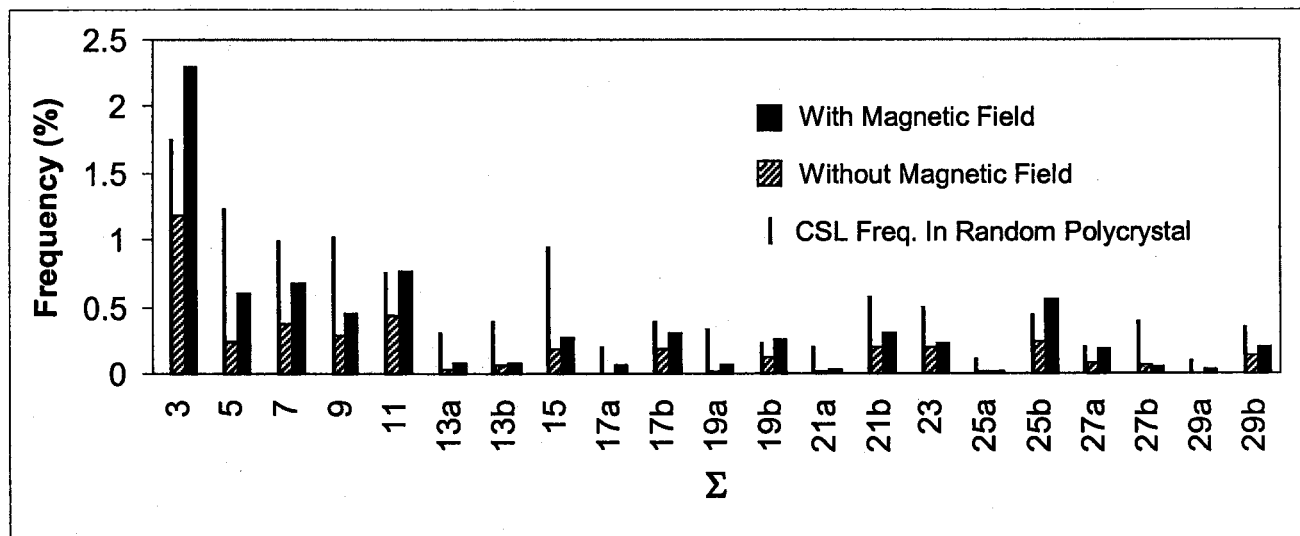


Fig. 5. Distribution of CSL boundaries in specimens heated at 880°C for 33min and cooled at 10°C/min without and with the 14 T magnetic field.

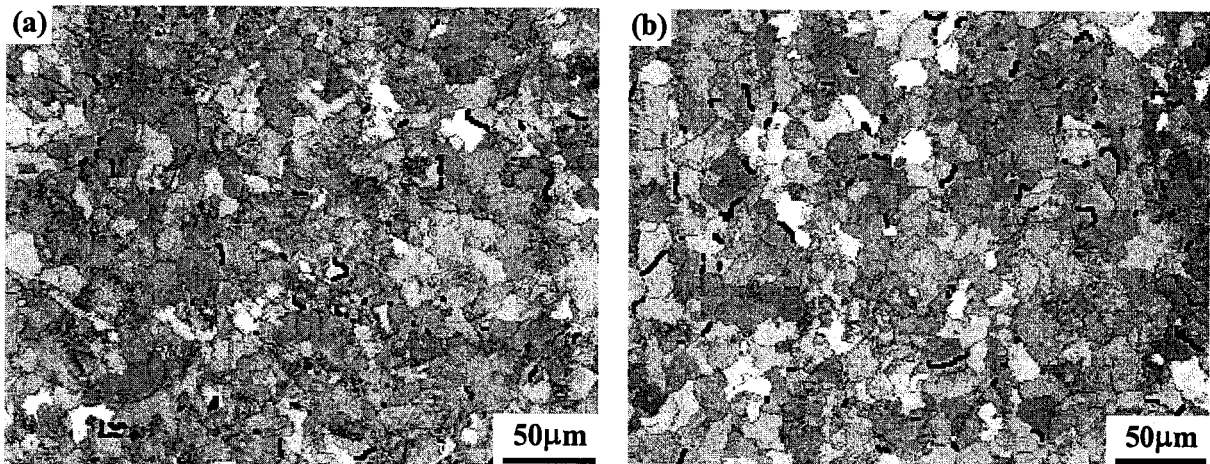


Fig. 6 OIM maps of specimens heated at 880°C for 33min and cooled at 10°C/min without (a) and with (b) the 14 T magnetic field. The black lines display the  $\Sigma 3$  boundaries. The hot-rolling direction and magnetic field direction are vertical. Step size: 1 $\mu$ m.



Fig. 7 Detailed locations of  $\Sigma 3$  boundaries. (OIM map of specimens heated at 880°C for 33min and cooled at 10°C/min with the 14 T magnetic field. The magnetic field direction and hot-rolling direction are vertical in this picture. Solid arrow: pearlite boundary; hollow arrow: proeutectoid ferrite boundary. Step size: 0.15 $\mu$ m.

#### 4. Discussion

For fully austenitized 42CrMo, austenite transforms first to equiaxed ferrite (called proeutectoid ferrite) between the  $Ar_3$  and  $Ar_1$  temperatures and then to pearlite (consisting of alternately distributed eutectoid ferrite and cementite lamellae) below  $Ar_1$  during subsequent slow cooling. For hypoeutectoid steels, eutectoid ferrite forms ahead of eutectoid cementite. The lamellar spacing of pearlite is temperature dependent. High temperature results in the increase of the mean inter-lamellar spacing, as high temperature promotes carbon diffusion and increases its diffusion length.

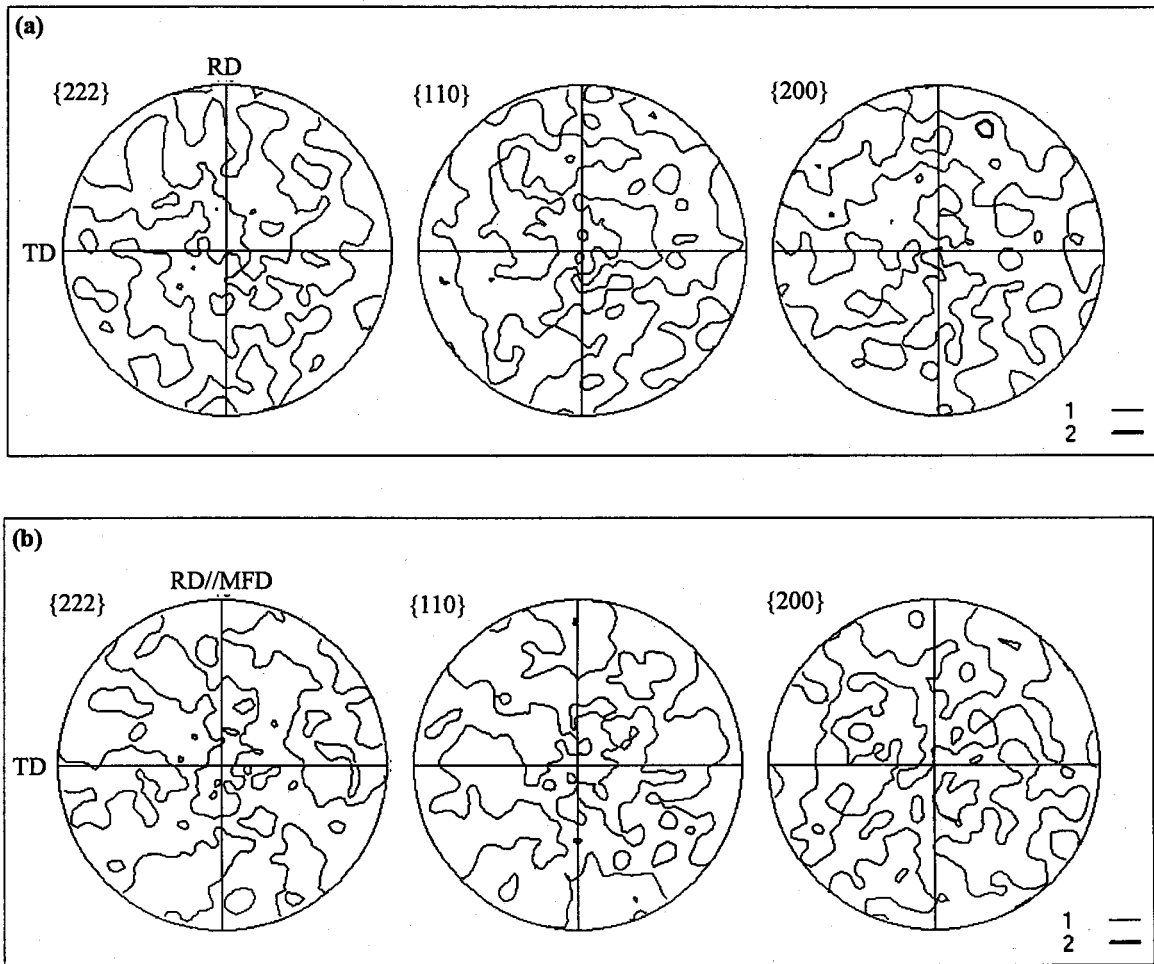


Fig. 8 Pole figures of the specimens treated (a) without and (b) with the 14 T magnetic field. The magnetic field direction is parallel to rolling direction.

The application of the magnetic field shows the effect of decreasing the frequency of low-angle boundaries ( $<15^\circ$ ), as seen in Fig. 3. Their congregated locations within colonies contoured by high-angle boundaries may be related to pearlite colonies. It is clearly seen in the zoom images in Fig. 4 that without a field, those low-angle misorientations are distributed more densely than with a field. Correspondingly, in Fig. 2, the inter-lamellar spacing of pearlite obtained without a field is smaller than with a field. These two tendencies are consistent with each other. This indicates that these low-angle misorientations are from lamellar ferrite in pearlite. However, the total amount of areas densely covered with low-angle misorientations (or pearlite colonies) in the OIM maps is obviously less than the total amount of areas of pearlite displayed in Fig. 1. This suggests that in many cases, ferrite lamellae from the same pearlite colony have misorientations less than  $1^\circ$ . Therefore, the magnetic field shows a clear effect of reducing the amount of pearlite colonies in which the misorientation between neighboring ferrite lamellae are larger than  $1^\circ$ , compare Fig. 4 (a) and (b).

As the product of transformation from austenite to pearlite includes two phases (ferrite and cementite) with different carbon contents and different crystal structures, the transformation

introduces different volume changes of these two phases and creates transformation stresses. This stress is pronounced when the cementite lamellae are alternately embedded in the eutectoid ferrite and can only be released through deformation of ferrite lamellae (since cementite is much harder than ferrite). The low-angle misorientations between ferrite lamellae originate mainly from this transformation stress. The transformation stress is also temperature dependent, and decreases with increasing temperature. As the transformation occurs during continuous cooling, only the pearlite forming at relatively low temperatures are subject to sufficient stress to deform, while those forming at high temperatures do not deform (as the stress level is too low).

As reported in [14], the magnetic field can considerably increase the eutectoid temperature in Fe-C binary system. Our calculations [12] showed an increase of 40 to 45°C. Then, the whole pearlite transformation shifts to the higher temperature range by the magnetic field. This temperature increase can be reflected in the larger inter-lamellar spacing of pearlite obtained under field in Fig. 2 (b). As a consequence, fewer ferrite lamellae undergo this deformation and create low-angle misorientations.

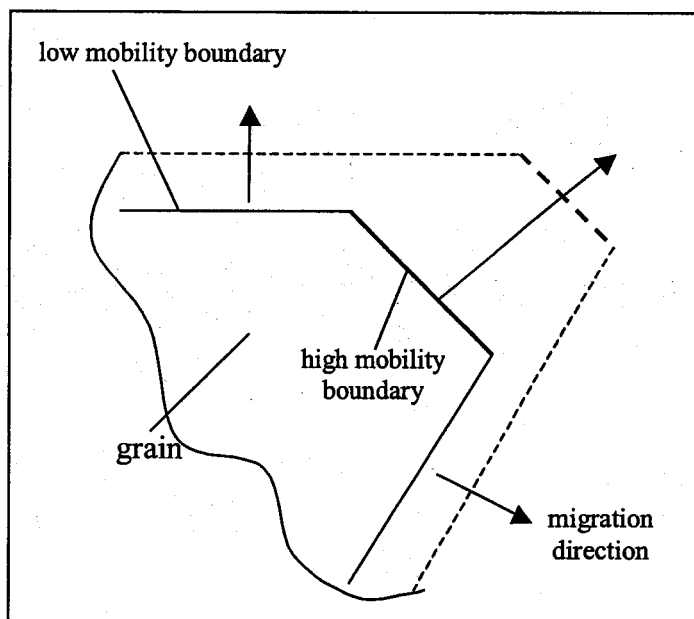


Fig 9 Schematic illustration of surface changes of different types of grain boundaries through migration at different velocities. Solid line: before migration; dashed line: after migration

The application of a magnetic field also has a considerable effect on the occurrence of coincidence boundaries as shown in Fig. 5. It increases the frequency of low  $\Sigma$  boundaries, especially  $\Sigma 3$ . It is known that different types of grain boundaries have different energies and mobilities. The random high-angle boundaries have high energy and high mobility [15], while some low  $\Sigma$  boundaries, especially  $\Sigma 3$  boundaries, have low energy and low mobility [1]. For grains with different types of boundaries, the growth through boundary migration will lead the lower mobility types to enlarge their boundary areas while the high mobility types to shrink,

as schematically illustrated in Fig. 9. Hence, after growth, the proportion of low mobility boundaries increases. Results reported in [14] also show that in addition to the eutectoid temperature, the magnetic field can also increase the  $Ae_3$  or austenite to proeutectoid ferrite transformation temperatures. The increase is even larger than for eutectoid temperature and amounts to  $50^\circ\text{C}$  as calculated in [12]. Therefore under the influence of a magnetic field, both proeutectoid and eutectoid ferrite undergoes a wider temperature range for growth. As a result, the portion of low  $\Sigma$  boundaries, especially  $\Sigma 3$  obtained under magnetic field is increased. In this case, the occurrence of  $\Sigma$  boundaries shown in Fig. 5 is increased by enlarging their boundary surface, as seen by comparing Fig. 6 (b) with (a).

Although the easiest magnetization crystallographic direction of ferrite is  $\langle 001 \rangle$  and the proeutectoid ferrite tends to align them to the field direction, no preferential crystallographic orientations were detected in the magnetic field treated specimen. This may be due to the quick saturation of magnetization in crystallographic directions at very low field [16] as opposed to the high field applied in this work. There is no evident directional effect of the magnetic field on the misorientation distribution and the frequency of coincidence boundaries along the magnetic field direction.

## **5. Conclusion**

1. A magnetic field can considerably decrease the occurrence of low-angle misorientations between eutectoid ferrite lamellae in pearlite colonies. This is consistent with the increasing eutectoid transformation temperature to reduce the transformation stress.
2. A magnetic field can strongly increase the frequency of  $\Sigma 3$ -29 coincidence boundaries, especially  $\Sigma 3$  boundaries, in the ferrite. This probably occurs through selective area enlargement of low mobility boundaries during the growth stage. There is no obvious directional effect of field on crystallographic orientation distribution.

## **Acknowledgments**

This study was financially supported by the key project of National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50234020), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2002AA336010), the National Science Fund for Distinguished Young Scholars (Grant No. 50325102) and the TRAPOYT in Higher Education Institutions of MOE, P.R.C.

The authors also gratefully acknowledge the support obtained in the frame of the Chinese-French Cooperative Research Project (PRA MX00-03).

The authors would like to thank the High Magnetic Field Laboratory for Superconducting Materials, Institute for Materials Research, Tohoku University, for the access to the magnetic field experiments



## References

- [1] T. Watanabe, *Res Mechanica* **11**, 47 (1984).
- [2] T. Watanabe, *Trans. Japan Inst. Metals (Suppl.)* **27**, 73 (1986).
- [3] S. Yamaura, S. Tsurekawa and T. Watanabe, *Mater. Trans.* **44**, 1494 (2003).
- [4] G. Wang, L. Zuo and C. Esling, *Philosophical Magazine A* **82**, 2499 (2002)
- [5] H. O. Martikainen and V. K. Lindroos. *Scand. J. Metall.* **10**, 3 (1981).
- [6] T. Watanabe, Y. Suzuki, S. Tanii and H. Oikawa, *Philosophical Magazine Letters* **62**, 9 (1990).
- [7] N. Masahashi, M. Matsuo, K. Watanabe. *J. Mater. Res.* **13**, 457 (1998).
- [8] C. S. He, Y. D. Zhang, X. Zhao, L. Zuo, J. C. He, K. Watanabe, T. Zhang, G. Nishijima, C. Esling, *Adv. Eng. Mater.* **5**, 579 (2003).
- [9] K. Harada, S. Tsurekawa, T. Watanabe and G. Palumbo, *Scripta Mater.* **49**, 367 (2003).
- [10] T. Watanabe, *Text. Microstruct.* **20**, 195 (1993).
- [11] K. Watanabe, S. Awaji, M. Motokawa, Y. Mikami. *Jpn. J. Appl. Phys.* **37-38**, L1148 (1998).
- [12] Y. D. Zhang, Ph D dissertation (Université de Metz, France; Northeastern University, P. R. China, 2004).
- [13] L. Zuo and C. Esling, *Scripta Metall. Mater.* **32**, 937 (1995).
- [14] H. D. Joo, S. U. Kim, N. S. Shin and Y. M. Koo, *Materials Letters* **43**, 225 (2000).
- [15] F. J. Humpherys and M. Hatherly, *Recrystallization and related annealing phenomena* (Pergamon Press, New York, 1995), pp.300.
- [16] J. Crangle, *The magnetic properties of solids* (Edward Arnold (Publishers) Ltd., London, (1977), p. 6.

### **Conclusions et perspectives**

Les problèmes techniques rencontrés par les industriels galvanisateurs et producteurs de zinc sont souvent des sujets d'études à court terme sur des aspects de surface, des difficultés de mise en peinture, des problèmes de poudrage sur les outils de mise en forme, de corrosion ou encore de fissuration pouvant entraîner une des difficultés mentionnées.

Les travaux réalisés au LETAM dans le cadre des précédentes thèses de Beaujean, Lazik ou Gaignard sont l'illustration même de problèmes rencontrés par les industriels mais qui ont néanmoins abouti à des études de thèse sur des sujets plus vastes et plus fondamentaux.

Le travail présenté dans le cadre cette thèse réalisée en coopération avec les industriels (UMICORE et ARCELOR) a également permis de mener une étude relativement fondamentale basée sur des sujets initiaux qui présentaient un intérêt pratique. En effet ce travail s'appuie sur des modèles mécaniques et numériques relativement élaborés (lignes de courant, plasticité polycristalline) pour comprendre les mécanismes de déformation activés lors de la mise en forme par traction uniaxiale ou expansion biaxiale.

L'objectif de cette thèse était d'étudier les relations entre textures, microstructures et propriétés mécaniques de feuillards d'alliages de zinc et de revêtements de zinc sur des tôles d'acier. Ces relations ont été étudiées en faisant appel à divers essais mécaniques tels que la traction uniaxiale, la déformation biaxiale par essai Marciniak, le laminage symétrique et asymétrique. Cette dernière déformation par laminage peut encore être subdivisée en deux parties. En effet suivant le type et la forme du matériaux étudié, revêtements de zinc ou alliage ZnCuTi massif, les taux de déformation ont été choisis pour correspondre soit à un skin-pass (environ 2% de déformation), soit à un laminage à fort taux de réduction (50% de déformation).

Pour chacun de ces traitements, les mécanismes régissant la formation et l'évolution des microstructures et des textures ont été identifiés. Un des buts de ce travail était en effet de mieux contrôler la formation des microstructures et des textures en vue d'améliorer les propriétés de résistance à la fissuration du zinc.

De ces études expérimentales et théoriques, les conclusions suivantes peuvent être tirées.

#### **Skin-pass des tôles galvanisées :**

Le skin-pass est une étape importante dans la préparation du produit final. Il permet non seulement d'imprimer la rugosité voulue afin d'améliorer la mise en peinture, mais aussi d'augmenter les caractéristiques mécaniques de l'acier galvanisé. Les essais de pliages de la tôle galvanisée ont démontré l'effet bénéfique du skin-pass sur l'amélioration de la résistance à la fissuration. La texture produite par le skin-pass est d'ailleurs moins prononcée que celle obtenue immédiatement à la sortie du bain de galvanisation. Les pics de densité des axes c de la figure de

pole (00.2) sont plus étalés et présentent une intensité plus faible. Les microstructures montrent de plus une réduction de la taille moyenne des domaines cristallins cohérents.

Pour étudier l'effet du skin-pass, le modèle des lignes de courant a été mis en oeuvre. Celui-ci met en évidence que la couche de zinc est soumise à une forte déformation élasto-plastique avec des contraintes de compression importantes suivant les directions normale DN et longitudinale DL. La présence de macles de compression dans les microstructures peut s'expliquer par cet état de contraintes de compression en sortie de skin-pass.

### **Laminage asymétrique :**

Le laminage asymétrique est actuellement un sujet sensible suscitant beaucoup d'intérêt de la part des industriels. La littérature que l'on peut trouver sur le sujet concerne essentiellement les matériaux à symétrie cubique. Aussi nous sommes nous intéressés à l'étude plus originale du skin-pass asymétrique et du laminage asymétrique du zinc pour étudier les mécanismes de déformations et l'évolution de texture lors du laminage asymétrique.

Ce travail a montré qu'il existe de grandes différences entre les deux matériaux étudiés. En effet dans le cas du ZnCuTi massif, le laminage asymétrique renforce l'intensité de la composante de texture basale bien en évidence sur la figure de pôle (00.2). De plus cette composante se trouve dans la direction opposée dans la figure de pôle à celle du laminage symétrique, de  $+40^\circ$  dans le plan (DN, +DL). Dans le cas du revêtement de zinc, on retrouve comme précédemment avec le skin-pass symétrique, une texture d'intensité moins marquée et présentant une composante de maillage suivant +DL et -DL. Ces différences peuvent s'expliquer par les taux de réduction très différents (50% contre 2%) et par la nature différente des matériaux laminés. Le ZnCuTi contient des filets de TiZn15 qui influent fortement sur les textures et de microstructures par rapport aux revêtements pour lesquels il s'agit de zinc quasiment pur.

Les simulations des textures obtenues grâce à la combinaison du modèle de lignes de courant et du modèle de Taylor dans sa version déformation imposée ont été comparées aux textures expérimentales. Il ressort de cette étude que la déformation par cisaillement est le facteur dominant qui gouverne l'évolution de texture durant le laminage asymétrique et que le principal système de glissement activé pour le laminage asymétrique est le système pyramidal de seconde espèce. Dans le skin-pass asymétrique, cette étude nous a montré qu'en plus des systèmes pyramidaux activés, le maillage fait partie des systèmes de déformations qui ont leur importance dans la constitution des textures cristallographiques.

### **Joints de grains spéciaux et joints de grains aléatoires :**

La résistance à la fissuration est également déterminée par les propriétés des joints de grains. Une simple approche géométrique des joints de grains conduisant à distinguer les joints de grains aléatoires et les joints de coïncidence (Coincident Site Lattice) ou joints spéciaux permet de mettre en évidence la meilleure résistance à la fissuration de joints spéciaux dans un revêtement de zinc.

Le critère de Brandon, qui fixe la tolérance angulaire par rapport à la valeur mathématique exacte pour définir la désorientation d'un joint CSL, a été restreint à  $10^\circ$  pour le zinc de réseau hcp

plutôt que les  $15^\circ$  admis pour les matériaux cubiques. Cette valeur conduit à des résultats plus cohérents et représente un sixième du domaine fondamental de la symétrie hexagonale dans la rotation autour de l'axe A6 de même que pour le cubique la valeur de  $15^\circ$  représente un quart du domaine fondamental de la symétrie cubique dans la rotation autour de l'axe A4. Une nouvelle table des axes et angles de désorientation des joints CSL a pu alors être établie, pour diverses approximations rationnelles du rapport  $c/a$  de la maille hexagonale du zinc.

La distribution des désorientations aux joints de grains du revêtement de zinc a été déterminée à partir de mesures d'orientations individuelles en EBSD et comparée à la distribution des désorientations pour une texture théorique aléatoire. La fréquence maximum des angles de désorientations dans les joints de grains du revêtement est située à  $30^\circ$  environ. Le calcul des taux de joints CSL pour une texture isotrope a permis de calculer les fréquences relatives de fréquences de joints CSL dans l'échantillon rapportées aux fréquences des joints CSL dans un échantillon à texture parfaitement aléatoire. Cette comparaison met en évidence des fréquences relatives élevées de joints CSL  $\Sigma 1$  ou joints de faible désorientation, ainsi que des joints de coïncidence  $\Sigma 7$ ,  $\Sigma 11$ ,  $\Sigma 13$  et  $\Sigma 19$ . Ces joints spéciaux démontrent une très bonne résistance à la fissuration intergranulaire.

Les rares joints CSL qui fissurent sont des joints de grains dont le plan est quasiment perpendiculaire à la direction de traction, c'est à dire soumis à une contrainte effective de traction maximale. Il semblerait qu'à ce stade de la déformation, on ait dépassé localement sur le joint concerné la contrainte critique de fissuration, notamment en raison de la redistribution des contraintes locales suite à la fissuration de certains joints de grains aléatoires plus fragiles.

L'étude des fréquences des joints CSL a également été réalisée dans un substrat 42CrMo à bas carbone qui avait été soumis à un traitement thermomécanique sous champ magnétique intense. L'échantillon avait subi une austénitisation à  $880^\circ\text{C}$  pendant 33 minutes ( $A_{c3}=780^\circ\text{C}$ ), puis soumis à un champ magnétique d'intensité de 14 Tesla pendant le refroidissement.

La fréquence des joints à faibles désorientations est plus basse pour l'échantillon soumis au champ magnétique que pour celui ayant subi un traitement identique mais sans champ magnétique. Concernant les CSL, Cette étude révèle l'accroissement des fréquences des joints CSL – surtout de type  $\Sigma 3$  - pour un échantillon soumis au champ magnétique.

### **Perspectives :**

L'étude des revêtements de zinc sous champs magnétique encore plus intense en raison du diamagnétisme du zinc (comparé au ferromagnétisme du substrat) pourrait être envisagée afin de modifier les propriétés de microstructure, ainsi que les caractéristiques des joints de grains.

L'approche expérimentale qui a été développée au cours des diverses études sur le skin-pass ne prend pas en compte l'interface entre le zinc et le substrat. Il semblerait donc qu'une étude approfondie de l'influence spécifique du substrat et des intermétalliques à l'interface acier-zinc soit utile à la compréhension des mécanismes de formation des textures et à l'amélioration de la

résistance à la fissuration. En effet l'étude qui est faite ici ne prend pas en compte la possibilité de l'initiation des fissures à l'interface avant leur propagation dans le revêtement de zinc.

Enfin il serait intéressant d'approfondir l'étude du laminage asymétrique des feuilles de l'alliage zinc bâtiment (ZnCuTi) dans l'optique d'une amélioration sensible de la résistance à la fissuration au pliage, notamment aux basses températures correspondant à la transition ductile fragile de cet alliage.

### **Conclusions and prospects**

The technical problems encountered by the galvanization-industry managers and zinc producers are often subjects of short-term studies on surface aspects, difficulties in painting, problems of powdering on working tools. Corrosion or cracking being involved in any of the above difficulties.

The works completed in LETAM within the framework of the preceding theses of Beaujean, Lazik or Gaignard are the very illustration of problems encountered by the industrialists but who nevertheless ended up in doctoral studies on larger and more fundamental subjects.

The work presented within the framework of this thesis carried out in co-operation with industrialists (UMICORE and ARCELOR) also made it possible to undertake a relatively fundamental study based on initial subjects which were of practical interest. Indeed this work is based on mechanical and numerical relatively elaborate models (flow line model, polycrystalline plasticity) to understand the deformation mechanisms activated during the working process.

The objective of this thesis was to study the relations between textures, microstructures and mechanical properties of bulk zinc alloy sheets and zinc coatings on steel sheets. These relations were studied by resorting to various mechanical tests such as uniaxial tensile test, biaxial expansion by the Marciniak test, symmetrical and asymmetrical rolling. This last deformation by rolling can still be subdivided in two parts. According to the type and the shape of the material studied, zinc coating or bulk ZnCuTi alloy, the deformation rates were selected to correspond either to a skin-pass (approximately 2% of deformation), or to a very strong rolling reduction ratio (50% of deformation).

For each one of these treatments, the mechanisms governing the formation and the evolution of the microstructures and textures were identified. Indeed, one of the aims of this work was to improve the control of the formation of microstructures and textures in order to improve the properties of cracking resistance of zinc.

From these experimental and theoretical studies, the following conclusions can be drawn.

#### **Skin-pass rolling of coated sheets:**

Skin-pass is an important stage in the preparation of the end product. Not only makes it possible to engrave the desired roughness in order to improve the setting of paint, but also to increase the mechanical characteristics of galvanized steel. The bending tests of galvanized sheets showed the beneficial effects of skin-pass on the improvement of cracking resistance. The texture produced by skin-pass is less marked than that obtained right at the exit of the galvanization bath. The  $c$  axes peaks on (00.2) poles figure are more scattered and have a lower intensity. Moreover the microstructures show a reduction of the average size of the coherent crystalline domains.

To study the effect of skin-pass, the flow line model was implemented. It highlights that the zinc layer is subjected to a strong elastoplastic deformation with important compressive stresses in the normal DN and longitudinal DL directions. The presence of compressive twins in the microstructures can be explained by this state of stresses at the skin-pass exit.

### **Asymmetric rolling :**

Asymmetrical rolling is currently a burning topic arousing the interest of the industrialists. The existing literature on the subject relates to materials with primarily cubic symmetry. Thus we got interested in the more original study of the asymmetrical skin-pass and the asymmetrical rolling of zinc to study the deformation mechanisms and the texture evolution during asymmetrical rolling.

This work showed that there are great differences between two materials studied. Indeed in the case of bulk ZnCuTi, asymmetrical rolling strengthens the intensity of the basal component on the (00.2) pole figure. Moreover this component points in the pole figure at  $+40^\circ$  in (DN, +DL) plane, in the opposite direction as compared to symmetrical rolling. In the case of zinc coating, we find again, as with symmetrical skin-pass, a texture of weakened intensity and presenting a twinning component in +DL and -DL. These differences can be explained by the very different reduction ratios (50% versus 2%) and by the different materials rolled. ZnCuTi contains a network of thin strips of TiZn15 that strongly influences textures and microstructures contrarily to the coatings which are of almost pure zinc.

Simulations of the textures obtained by the combination of the flow line model and the Taylor model (in its full constrained version) were compared with experimental textures. It appears from this study that the shear deformation is the dominant factor which controls the texture evolution during asymmetrical rolling and that the main slip system activated in asymmetrical rolling is the pyramidal system of second kind. This study also showed that in asymmetrical skin-pass, in addition to the activated pyramidal slip systems, twinning belongs to the deformation systems that contribute to the constitution of the crystallographic textures.

### **Special and random grain boundaries:**

Cracking resistance is also determined by the properties of the grain boundaries. A simple geometrical approach of the grain boundaries results in sorting the grain boundaries in random boundaries and coincidence boundaries (Coincident Site Lattice CSL) - or special boundaries. It highlights an improved cracking resistance of special boundaries in a zinc coating.

The Brandon criterion, which sets the maximal angular deviation from the exact mathematical value for defining the misorientation of a CSL boundary, was restricted to  $10^\circ$  for the zinc of hcp network rather than the  $15^\circ$  allowed for cubic materials. This value leads to more coherent results and represents a sixth of the asymmetric unit of hexagonal symmetry in the rotation around the A6 axis just as for cubic the value of  $15^\circ$  represents a quarter of the asymmetric unit of cubic symmetry in rotation around the A4 axis. A new table of the misorientation axes and angles of CSL boundaries could be established for various rational approximations of the zinc c/a ratio.

Grain boundary misorientation distribution of the zinc coating was determined from individual orientation measurements by EBSD and compared with the misorientation distribution for a model random texture. The maximum frequency of the misorientation angles in the grain boundaries of the coating is located at  $30^\circ$  approximately. The calculation of the CSL frequencies for an isotropic texture made it possible to calculate the ratio of CSL frequencies in the sample to the CSL frequencies in a perfectly random sample. This comparison gives high relative frequencies  $\Sigma 1$  or low angle grain boundaries, as well as  $\Sigma 7$ ,  $\Sigma 11$ ,  $\Sigma 13$ , and  $\Sigma 19$  CSL coincident boundaries. These special grain boundaries show a very good resistance to intergranular cracking. The rare CSL boundaries presenting cracks are those whose boundary plan is almost perpendicular to the tensile direction, i.e. subjected to a maximum effective tensile stress. It would seem that at this stage of the deformation, the critical fracture stress has been locally exceeded on the boundary concerned, possibly because the redistribution of the local stresses following the cracking of some more fragile random grain boundaries.

The study of the CSL boundary frequencies was also carried out in a low carbon 42CrMo substrate which had been subjected to a thermomechanical treatment under high magnetic field. The sample had been fully austenitized at  $880^\circ\text{C}$  for 33 minutes ( $A_{c3}=780^\circ\text{C}$ ), then submitted to a 14-T magnetic field during cooling.

The frequency of low angle boundaries is smaller for the magnetic field treated sample than for that having undergone an identical treatment but without magnetic field.

Concerning the CSL boundaries, this study reveals the increase in the frequency of the latter CSL boundaries - especially of  $\Sigma 3$  type - for a sample subjected to the magnetic field.

### Prospects:

The study of the zinc coatings under magnetic field could be planned in order to modify the microstructural properties, as well as the characteristics of the grain boundaries. But these magnetic fields should be even more intense because of the diamagnetism of zinc, compared to the ferromagnetism of the substrate.

The experimental approach developed for various studies on the skin-pass does not take into account the interface between zinc and the substrate. It would thus seem that a thorough study of the specific influence of the substrate and the intermetallics at the steel-zinc interface should be useful for the comprehension of the mechanisms of texture formation and for the improvement of the cracking resistance. Indeed the study presented here does not take into account the possibility of crack initiation at the interface before their propagation in the zinc coating.

Finally it would be interesting to study thoroughly the asymmetrical rolling of the sheets of the zinc alloy for the building industry (ZnCuTi) in view of a noticeable improvement of the cracking resistance to bending, especially at low temperature in the range of the ductile brittle transition of this alloy.



Annexes

## **SIMULATION DYNAMIQUE MOLECULAIRE DE JOINTS DE GRAINS DANS LE RESEAU HEXAGONAL COMPACT DU ZINC**

Les études sur les joints de grains sont nettement plus nombreuses sur les cristaux de symétrie cubique que ceux de symétrie hexagonale. Dans ce dernier cas, une difficulté supplémentaire provient de la nécessité de choisir une approximation rationnelle du rapport  $(c/a)^2$ . Selon l'approximation rationnelle choisie, les solutions des joints de coïncidence peuvent différer. Il nous a semblé intéressant de réaliser, en plus des calculs de coïncidence basés sur la simple structure des réseaux, des calculs énergétiques faisant appel aux techniques de dynamique moléculaire, pour comparer les résultats de calculs structuraux avec des calculs énergétiques. Comme ni le doctorant, ni même le laboratoire d'accueil ne sont spécialisés en dynamique moléculaire, ces simulations ont été réalisées en coopération avec Houda Feraoun et Hafid Aourag, et sont présentés en annexe de ce mémoire de doctorat d'Université.

Studies on grain boundaries are definitely more numerous on crystals of cubic symmetry than those of hexagonal symmetry. In this last case, an additional difficulty comes from the need for choosing a rational approximation of the  $(c/a)^2$  ratio. According to the rational approximation chosen, the solutions of the coincident boundaries may differ. It seemed worthwhile to realize, in addition to the coincidence calculations based on the simple lattice structure, energy calculations calling upon techniques of molecular dynamics, to compare the structural with energetical calculations. Since neither the Ph. D. student, nor even the host laboratory are specialized in molecular dynamics, these simulations were carried out in co-operation with Houda Feraoun and Hafid Aourag, and are presented in appendix of this Ph. D. dissertation.

## **Molecular dynamics simulation of grain boundaries in hcp Zinc**

H. Faraoun<sup>1</sup>, G. Vincent<sup>2</sup>, C. Esling<sup>2</sup> and H. Aourag<sup>1</sup>.

<sup>1</sup> Laboratoire d'Etudes et de Recherches sur les Matériaux, les Procédés et les Surfaces.

LERMPS-UTBM, France.

<sup>2</sup> Laboratoire d'Etude des Textures et Application aux Matériaux. LETAM, CNRS UMR-7078, France.

### **Abstract**

The stability of selected structures of grain boundaries in hexagonal lattice is studied by means of classical molecular dynamics (CMD). An embedded atom method potential of the Sutton-Chen type is fitted to zero pressure conditions in order to describe the interatomic interactions. Previous works showed that the metallic nature of bonding could be well described by this kind of potential. A slab geometry with semi-infinite lattice technique is used to construct the grain boundary initial structure. Relaxation is done in a constant pressure thermodynamic ensemble, allowing to obtain the system energy after local rearrangement of the interface. Twist grain boundaries with interface perpendicular to (001) and (100) direction – in three-axis notation - are studied to find the orientations that present significant stability. A set of possible stable misorientations is determined using a geometric model based on the Coincidence Site Lattice method and compared to the effective values as calculated by molecular dynamics. We find that molecular dynamics predicts the misorientations expected to be stable from the geometric model. Furthermore, the local relaxation of atoms can arrange a stable structure at some misorientations that are not geometrically expected.

### **Introduction**

Although the importance of grain boundaries in controlling the properties and behavior of polycrystalline materials has long been recognized, many fundamental aspects of grain boundary behavior remain poorly understood. Traditionally the grain boundary stability is discussed in terms of some pure geometric criteria based on the concept of Coincidence Site Lattice (CSL). Specific CSL-misorientations defined by angle and axis of rotation and by  $\Sigma$ -value (volume ratio of the coincidence superlattice cell to the lattice cell) provide a critical stability to the grain boundary [1]. However, because of the complexity of the atomic arrangement at the interface between the grains and because these atoms do not maintain rigid position but relax extensively at the boundary to reach equilibrium positions, the geometric investigation remains very limited. Moreover, it only can give some speculation about the possible structures, but no information on the configuration energies, which could inform us about their relative stability. Such aspect of the problem involves the use of atomic level investigation that could help to get an insight on the relative stability of different configurations. Fundamental first principles calculations are actually carried out in order to have an insight into the bonding and stability of grain boundaries and the

effect of additional impurities on crack propagation.[2]. First principles calculations in turn require enormous computational cost and are time consuming, so that only very limited number of atoms can be handled which prevent from dealing with physically realistic systems. In order to carry out such calculations, parallel processing is not only highly desirable but also in fact indispensable. On an other side, semi empirical models in conjunction with molecular dynamics simulation allow the investigation of systems involving huge number of atoms or lengthy time scales. This opens some perspectives to carry out atomistic calculations that are much closer to physical reality. In fact, in the last 20 years atomistic simulation played an increasingly important role in many areas of condensed matter and materials science [3]. A crucial issue in the success of any simulation is the interatomic potential. Rigorously, first principle molecular dynamics introduced by Car and Parinello [4], provides an accurate description of atomic interactions based on the knowledge of the system wave function. Nevertheless, it remains computationally intensive that makes it restricted to short simulation times and to a few hundred atoms. Hence, one has to deal with empirical potential methods, which provide rapid routines to get the thermodynamic and structural properties of materials with satisfactory accuracy. Among these methods, adapted to metallic systems are the embedded-atom method [5], the effective medium theory [6], the Finnis-Sinclair potentials [7], the Sutton-Chen many body potential [8] and the second-moment approximation to the tight-binding model [9].

In the present work, we propose the investigation of the structure and energetic stability of grain boundaries in zinc as a prototype of hexagonal close-packed metal. Our method is based on an atomic level model where molecular dynamics simulation is coupled to a semi empirical many body potential of the Sutton-Chen type to simulate the evolution of the atomic arrangement at the grain boundary.

## Calculation

In order to conduct molecular dynamics, we fitted an interatomic many body potential of the Sutton-Chen type to equilibrium lattice properties. In the formulation of the potential, the energy is written as a sum of a pair-wise repulsive plus a many body attractive part with an effective coordination density. Analytically, we write:

$$E_i = \sum_{j=1 \neq i}^N D V(r_{ij}) - D c \rho_i^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

where  $r_{ij}$  is the distance between atoms  $i$  and  $j$  and  $V(r_{ij})$  the pair-wise repulsive term:

$$V(r_{ij}) = \left( \frac{\alpha}{r_{ij}} \right)^n \quad (2)$$

$\rho_i$  captures the metallic bonding by representing a local energy density associated with the atom  $i$  and defined as:

$$\rho_i = \sum_{j=1 \neq i}^N \left( \frac{\alpha}{r_{ij}} \right)^m \quad (3)$$

In the above equations,  $\alpha$  is a length scale parameter used to get dimensionless arguments for  $V(r)$  and  $\rho(r)$  functions and is set equal to the equilibrium lattice parameter. The remaining parameters were obtained by fitting to the zero temperature and zero pressure conditions of the metal. The fit was performed using Newton-Raphson functional minimization of the sum of squares by varying the potential parameters  $D$  and  $c$ . The two integers  $n$  and  $m$  were required to fit the two following equations derived from the zero pressure conditions, the bulk modulus  $B$  and the Cauchy discrepancy  $P_c$ .

$$n=3\sqrt{\left(\frac{\Omega B}{E_{\text{coh}}}\right)\left(\frac{B}{2P_c}+1\right)} \quad (4)$$

$$m=6\sqrt{\frac{\left(\frac{\Omega}{E_{\text{coh}}}\right)}{\left(\frac{B}{2P_c}+1\right)}} \quad (5)$$

where  $E_{\text{coh}}$  is the cohesive energy and  $\Omega$  the equilibrium volume.

Our molecular dynamics simulation was carried within an isothermal isobaric (NPT) thermodynamic ensemble. The simulation box contained 18000 atoms. To start the simulation, atoms are positioned on the crystallographic positions of an hcp perfect crystal. Then the crystal is split into two equivalent parts, each being infinite in the plane parallel to the separation using periodic boundary conditions. One of those parts is then misoriented around the rotation axis (perpendicular to the boundary plane) by an angle  $\alpha$ .

At the separation interface, on both sides of the boundary, a slab of five atomic layers is left free to move following the dynamical evolution during the MD relaxation. The remaining layers (fifteen on each side) are kept fixed in the directions parallel to the separation plane and free to move along the perpendicular one. The atoms are so partially fixed to ensure that the orientation of each grain will not be lost during the relaxation. A molecular dynamics run is then performed during a total of 30000 MD steps corresponding to 105 pico-seconds (ps). First, the system is equilibrated using the fifth-order predictor-corrector algorithm at constant volume until reaching the simulation desired temperature (300K). This initialization phase was of 10000 MD step corresponding to 35ps. Then, the Newton equations of motion are integrated using the Andersen constant pressure method [10] allowing boundary atoms to reach the positions of interface stability, keeping the system at zero pressure at each step. The simulation total period (105 ps), and time step ( $3 \times 10^{-3}$  ps), were chosen such that the total energy converges to  $10^{-3}$ eV in the last 500 steps.

Various runs were so performed for different values of the disorientation angle and two different separation planes corresponding to two varieties of twist grain boundaries. For a rotation around the hexagonal c-axis with the interface parallel to the basal plane, the hexagonal symmetry allows to restrict to the angular range from 0 to 30°. For a rotation around the hexagonal a-axis with the separation plane parallel to the (100) prismatic plane, the corresponding angular interval ranges from 0 to 180°. In each case, we explored the selected interval with a step angle of 0.5°. This allows a fine resolution of the angles corresponding to the energy minimums, i.e. the most stable grain boundary structures. Starting from a purely geometrical criterion, a grain boundary is expected to be stable when its structure corresponds to what is called a Coincidence Site Lattice (CSL) boundary. A CSL-boundary is obtained when the disorientation between the two adjacent grains is such that a fraction of the lattice nodes overlap so as to build a superlattice of

coincidence. The volume ratio of the superlattice elementary cell to the original lattice cell defines the order, conventionally denoted  $\Sigma$ , of the CSL or  $\Sigma$ -grain boundary. As there may be in practice some deviation from the mathematical exact coincidence, tolerance criteria have been suggested, among them the most commonly accepted is the Brandon criterion [11] defined as:

$$v_m = v_0 \Sigma^{-\frac{1}{2}} \quad (6)$$

where  $v_0$  is the angular limit to a subgrain boundary and  $v_m$  the angular limit corresponding to a  $\Sigma_i$  of order  $i$ . We set the value  $v_0$  equal to  $10^\circ$  instead of the  $15^\circ$  generally adopted in the case of cubic symmetry [12-14]. In the hexagonal crystalline system of zinc, a  $10^\circ$  rotation around the highest order A6 axis accounts for 1/6 of the asymmetric unit, just as in the cubic system a  $15^\circ$  rotation around the highest order A4 axis accounts for 1/6 of the corresponding asymmetric unit. In addition, it appeared that this choice of  $10^\circ$  led to more coherent results on the improved properties of the CSL GBs, especially on the cracking resistance. Mackenzie et al [15] even set the value  $v_0$  as low as  $7.5^\circ$  in a CSL grains boundary statistics study of  $\text{Ni}_3\text{Al}$ . If the actual disorientation between two neighboring grains is noted  $\Delta g_{12}$  the deviation  $M_D$  from the perfect  $\Sigma$ -coincidence  $M_{\text{CSL}}$  is calculated according to:

$$M_D = \Delta g_{12} \cdot M_{\text{CSL}}^{-1} = \Delta g_{12} \cdot M_{\text{CSL}}^T \quad (7)$$

where the actual disorientation  $\Delta g_{12}$  and the exact  $\Sigma$ -disorientation  $M_{\text{CSL}}$  may be given in matrix form for the convenience of the calculation. The tested grain boundary is assigned to be a  $\Sigma$ -coincidence boundary when the deviation from mathematical exact disorientation is restricted within the  $v_D \leq v_m$  tolerance limit, where  $v_D$  denotes the angle of the disorientation  $M_D$ .

## Results:

The results of molecular dynamics are presented on figures 1 and 2 in the form of energy variation ( $\Delta E = E(0) - E(\theta)$ ) as a function of the disorientation angle  $\theta$ . We note first that the deepest minimum is at  $\theta = 0$  corresponding to the perfect coincidence (no disorientation across the grain boundary). Further, the system energy fluctuates around an average value that is higher than the systems initial one, and some minimums and maximums are distinctly marked. We are interested in the pronounced minimums observed at some special values of the disorientation angle. Their presence indicates energetically stable configurations. In the first case of a rotation around the hexagonal c-axis, we have minimums at  $\theta = 2.5, 9.5, 12.5, 19, 22$  and  $25^\circ$ , while for the second case of rotation around the hexagonal a-axis, the critical angles are not all equivalently distinguishable. Notably we have two deep minimums at  $\theta = 47$  and  $93^\circ$  in addition to less pronounced ones at  $\theta = 11, 27.5, 33, 72.5, 79, 85,$  and  $100^\circ$ .

The lattice coincidences calculated on a pure geometric method up to a maximum coincidence order  $\Sigma \leq 28$  are reported on table-1 and compared to the molecular dynamics results.

For rotation around (001)-axis, the disorientation angles that lead to geometrical lattice coincidence are all predicted by molecular dynamics as energetically favorable: We find the energy minimums within Brandon's tolerance interval around each mathematical exact value.

The comparison between the two approaches to determine special grain boundaries, from purely geometrical point of view (CSL boundaries) and from the energetical point of view (Molecular

Dynamics) also shows that the restriction of the angle  $\nu_0$  in Brandon's criterion is justified as it leads to very coherent results.

Moreover, some misorientations that are not found with the pure geometrical model lead nevertheless to energetically stable structures. This indicates that the local atomic arrangement at the interface can produce stable configurations without geometrical lattice correspondence, the orientation of each grain is thought to be locally lost. However we note that for those cases, the energetic stability is less pronounced than for the cases with lattice coincidence.

For the case of rotation around the (100)-axis, the geometrical coincidence is very sensitive to the  $c/a$  ratio. In the atomistic calculations, the lattice is free to expand or contract in the direction perpendicular to the interfacial plane as explained previously. Accordingly, a more important discrepancy may be expected between low energy misorientations predicted by the two methods. The atomic relaxation gives more flexibility to the lattice, so that it reaches equilibrium in the neighborhood of the geometric coincidence, but the  $c/a$  ratio may have slightly changed following the relaxation. As in the previous case, some stable orientations are predicted by means of atomistic calculation that do not correspond to a low  $\Sigma$ -lattice coincidence. In particular, the expected great energetic stability for  $\theta = 93^\circ$ , without CSL-geometric correspondence, is thought to be due to the atomic local rearrangement

### **Conclusion:**

In this paper, we present the study of structural and energetic stability of twist grain boundaries in the hexagonal close-packed zinc metal. We developed an atomic level model based on a semi empirical many body potential of the Sutton-Chen type fitted to the equilibrium conditions. Molecular dynamics simulation is used to simulate the relaxation of atomic positions at the grain boundary. The unrelaxed grain boundary structures are calculated using geometrical model and compared to the molecular dynamics predicted ones. We find that the disorientation angles corresponding to geometrical lattice coincidence are predicted by molecular dynamics as energetically favorable. Furthermore, it comes out that the relaxation of atoms at the grain boundary can arrange some stable configurations that do not match to geometrical exact lattice coincidence. It appears then that the MD approach is a useful tool to improve the understanding of grain boundary structure at the fundamental level of the atomistic structure.

Rotation axis	Geometrical model				Molecular Dynamics critical disorientation angle
	CSL- disorienta tion angle	c/a ratio	Brandon' s angular tolerance	$\Sigma$	
001	-	-	-	-	2.5
	-	-	-	-	9.5
	13.17	Any	2.29	19	12.5
	-	-	-	-	19
	21.79	Any	3.77	7	22
	27.80	Any	2.77	13	25
100	-	-	-	-	11
	26.53	1.83	2.29	19	27.5
	29.93	1.87	2.58	15	-
	34.30	1.87	2.08	23	33
	38.94	1.83	1.92	27	-
	49.68	1.87	2.42	17	47
	49.99	1.86	1.88	28	-
	50.47	1.83	3.01	11	-
	70.53	1.83	3.33	9	72.5
	-	-	-	-	79
	86.62	1.83	2.42	17	85
	86.18	1.85	2.58	15	-
	85.59	1.87	2.77	13	-
	-	-	-	-	93
	-	-	-	-	100

Table-1 Stable grain boundary misorientations calculated via MD simulation compared to geometrical coincident site lattice CSL model calculation.

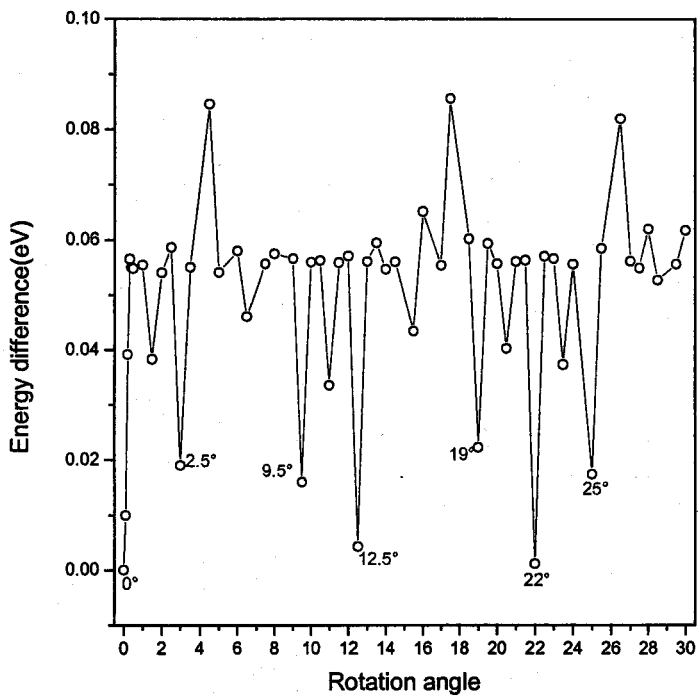


Figure 1- Energy difference vs. misorientation angle through the hexagonal c-axis (001).

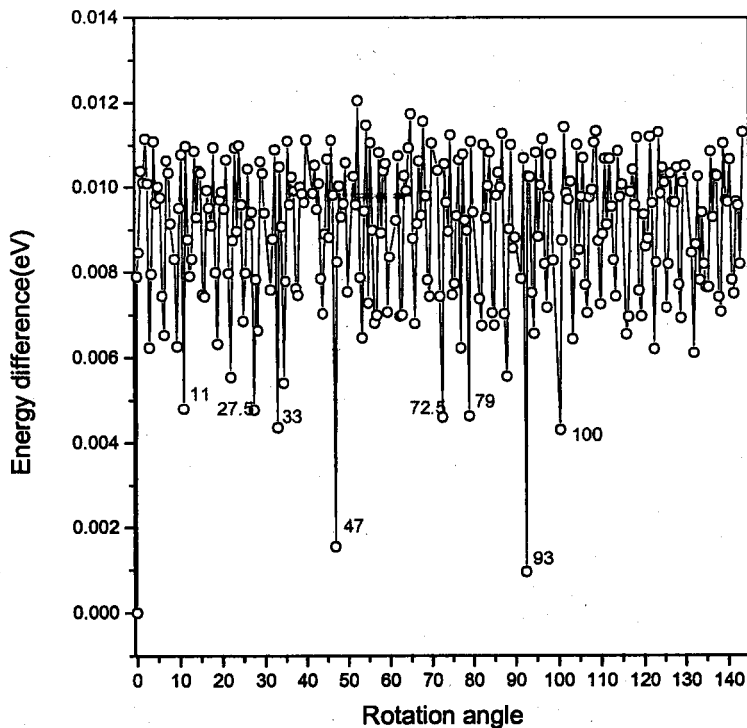


Figure 2- Energy difference vs. misorientation angle through the hexagonal a-axis (100).



References:

- 1- M. L. Kronberg and F. H. Wilson. Trans. AIME. 185 (1949), p. 501.
- 2- Ruqian Wu, A. J. Freeman & G. B. Olson, "First Principles Determination of the Effects of Phosphorus and Boron on Iron Grain Boundary Cohesion," Science 265, 376-80 (1994).
- 3- Computer simulation in material science, edited by M. Meyer and V. Pontikis (Kluwer, Dordrecht; 1991).  
Computer simulation in chemical physics, edited by M.P. Allen and D.J. Tildesle (Kluwer, Dordrecht; 1993).  
Computer simulation in Material science, edited by N.O. Krichner, L.P. Kub.
- 4- R. Car and M. Parinello, phys Rev Letter 55, 2471 (1985).
- 5- M.S. Daw and M.I. Baskes, Phys. Rev. B 29, 6443 (1984).
- 6- J.K. Nørskov, Rep. Prog. Phys. 53,1253 (1990).
- 7- M.W. Finnis and J.E. Sinclair, Phil. Mag. A50, 45 (1984).
- 8- A.P. Sutton and J. Chen, Phil. Mag. Lett. 61, 139 (1990).
- 9- F. Ducastelle, J. Phys (Paris) 31, 1055 (1970).
- 10- Hans C. Andersen, Molecular dynamics simulation at constant pressure and/or temperature, J. Chem. Phys. 72 (1980), no. 4, 2384-2393.
- 11- D. G Brandon, Acta Metall. 14 (1966), 1479.
- 12- W T Read, W Shockley, Physical Review 78 (1950), 275.
- 13- T. Kim, K. Tae Hong, K. Sub Lee, Intremetallics 11 (2003), 33.
- 14- J.-Q. Su, M. Demura, T. Hirano, Acta Materialia 51 (2003), 2505.
- 15- R.A.D. Mackenzie, M.D. Vaudin and S.L. Sass, Proc. Materials Research Society Symp. No. 122, 'Interfacial Properties and Design', Ed. M.H. Yoo et al, MRS, Pittsburg, USA, (1988) 461, *quoted in* V. Randle, "The Measurement of Grain Boundary Geometry", Electron Microscopy in Materials Science Series, edited by Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, (1993).

## REPRESENTATION DES ORIENTATIONS

### A1. Mesure et exploitation des figures de pôles.

#### A1.1 Le concept

Un matériau monphasé cristallin est composé d'un ensemble de grains, séparés par des joints de grains. Chaque cristallite possède une orientation  $g$  qui lui est propre. Dans le cas courant, le nombre de cristallites est si élevé que la recherche d'une description de l'orientation de chaque cristallite dans l'échantillon n'est pas réaliste. Il est plus facile de faire une description statistique à l'aide de la Fonction de Densité des Orientations, désignée "ODF" en anglais et notée  $f(g)$  qui donne la fraction volumique de grains  $dV(g)/V$  dont l'orientation est  $g$  à  $dg$  près:

$$\frac{dV(g)}{V} = f(g) dg \quad (\text{équation 1})$$

où  $V$  est le volume total considéré dans l'étude statistique.

$f(g)$  caractérise la texture cristallographique du matériau. Cette relation traduit la fraction du volume  $dV(g)/V$  des grains possédant l'orientation  $g$  à  $dg$  près. En d'autres termes,  $f(g)$  donne la fonction de densité de l'orientation des grains, indépendamment de leur localisation dans le matériau.

$f(g)$  est une fonction de densité statistique normée à l'unité :

$$\int f(g) dg = 1 \quad (\text{équation 2})$$

Un échantillon dans lequel les grains seraient orientés de manière aléatoire, c'est à dire ayant une texture isotrope ou encore sans texture, serait caractérisé par :

$$f(g) = 1 \text{ pour tout } g \quad (\text{équation 3})$$

Pour pouvoir décrire  $g$ , orientation des cristallites par rapport à l'échantillon, on utilise deux repères ; il est d'usage d'affecter :

- le repère  $K_A$  à l'échantillon macroscopique
- le repère  $K_B$  à chaque cristallite (fig. 1)

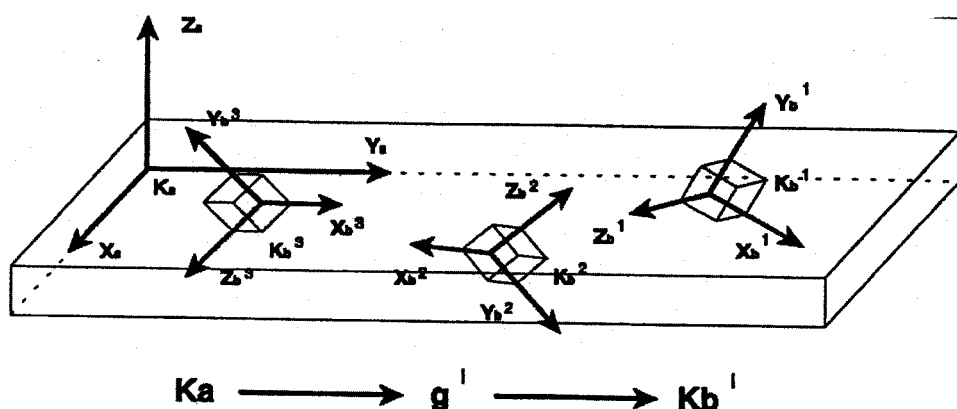


Figure 1 : Correspondance entre le repère de l'échantillon  $K_A$  et le repère de la cristallite  $K_B$ .

L'orientation  $g$  qui permet de faire coïncider, à translation près, le repère d'échantillon  $K_A$  et le repère  $K_B$  peut être définie de plusieurs manières :

- une matrice d'orientation  $g = [g_{ij}]$
- les indices cristallographiques ou notation métallurgique  $(hk.l)$   $[uvw]$
- les angles d'Euler  $(\varphi_1, \phi, \varphi_2)$  (**fig. 2**)

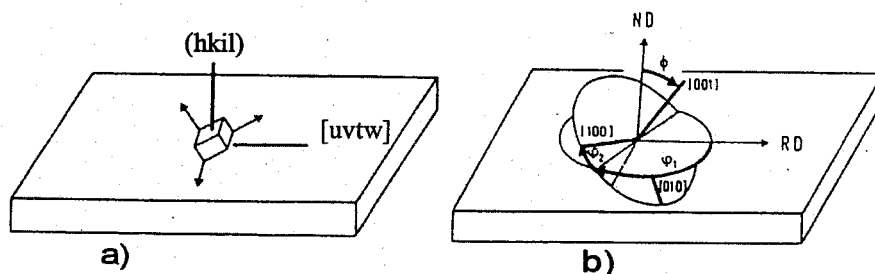


Figure 2 : Deux descriptions particulières de l'orientation d'un cristal

a) par les indices cristallographiques

b) par les angles d'Euler.

Dans les dernières années, les angles d'Euler se sont progressivement imposés pour traiter les analyses quantitatives de texture.

### A1.2 Les angles d'Euler

En considérant le repère de l'échantillon  $K_A$  (DL, DT, DN), l'orientation  $g$  caractéristique d'un grain est déterminée en effectuant (**fig. 3**)

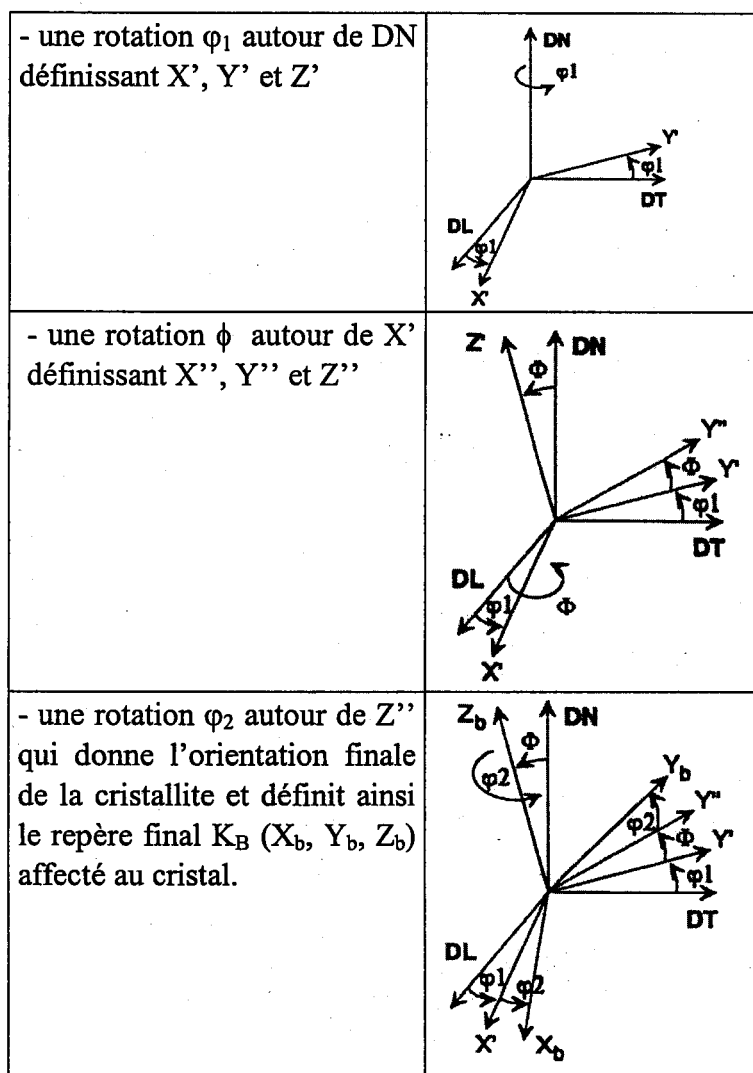


Figure 3 : Définition des trois angles d'Euler ( $\varphi_1$ ,  $\phi$ ,  $\varphi_2$ ) selon [Bunge (1993)].

## A2. Méthodes de mesure :

Pour déterminer la fonction de densité des orientations, il est possible d'utiliser deux voies expérimentales :

### A2.1. Mesures d'orientations individuelles

Ce sont des méthodes fondées sur la microscopie électronique qui consistent à réaliser une cartographie complète [Hjelen (1993), Kunze (1993), Juul Jensen (1993)] de l'échantillon en déterminant directement l'orientation individuelle de chaque grain. Cette technique conduit à l'obtention de la microtexture et/ou de la mésotexture (désorientation des joints de grain) (Fig. 4a). Le principe de la méthode consiste à focaliser un faisceau d'électrons sur le grain dont

on détermine l'orientation. Au contact de l'échantillon, les électrons rétrodiffusés se trouvant dans les conditions de Bragg par rapport aux plans cristallographique vont diffracter selon deux cônes de diffraction appelés cônes de Kossel. Les électrons étant très énergétiques, l'angle au sommet des cônes sera très grand et l'intersection des cônes de Kossel avec le plan du dispositif de détection sera semblable à des lignes parallèles (Fig. 4b). L'ensemble des lignes obtenues forme un diagramme, appelé diagramme de Kikuchi, dont l'indexation permet de déterminer l'orientation du cristal par rapport à un repère lié à l'échantillon et d'en déduire la texture locale [Schwarzer (1993)].

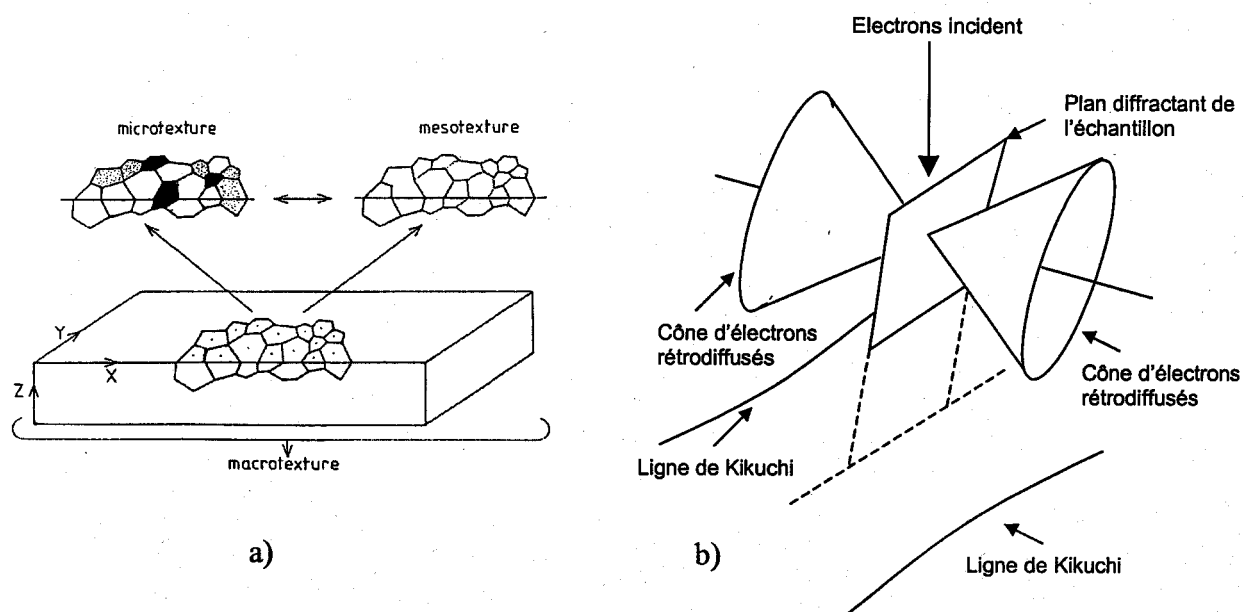


Figure 4 : a) Mesures d'orientations individuelles, b) Cônes de Kossel et lignes de Kikuchi.

### A2.2. Mesures de figures de pôles

Ce sont les méthodes les plus employées qui permettent d'explorer les fractions volumiques  $dV$  de grains suivant deux des trois angles fixés, le troisième pouvant prendre toutes les valeurs possibles. [Bunge (1993)] Cette mesure de fractions volumiques  $dV$  (rappelons que dans l'espace d'Euler l'élément différentiel de volume s'exprime par  $dV = \frac{1}{8\pi^2} \sin \Phi d\varphi_1 d\Phi d\varphi_2$ ) conduit au

calcul de la fonction de densité des orientations à partir de la mesure de plusieurs figures de pôles indépendantes. L'expérimentation ne permet pas de mesurer directement la fonction de texture tridimensionnelle, mais seulement les projections bidimensionnelles nommées figures de pôles.

Une telle figure de pôles, mesurée à l'aide d'un goniomètre de texture, représente donc la densité de pôles  $P$  des plans  $\{hk.l\}$  qui ont leur normale  $h_i$  parallèle à un vecteur  $y$ , fixée dans le repère macroscopique d'échantillon  $K_A$ . Le vecteur  $y$  est défini par deux angles  $\alpha$  et  $\beta$  appelées

respectivement angle de déclinaison et d'azimut et qui correspondent aux différents mouvements du goniomètre (fig. 5).

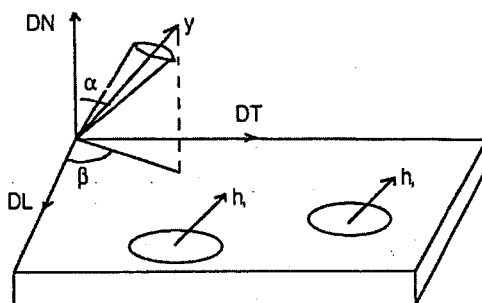
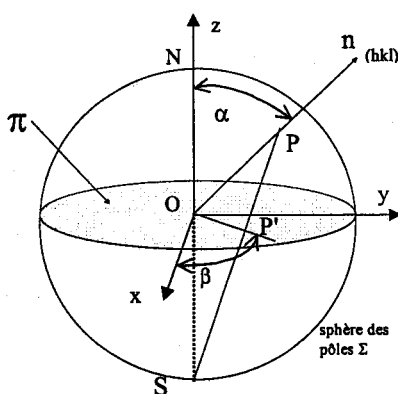


Figure 5 : Définition des angles  $\alpha$ ,  $\beta$ , et du vecteur  $y$ .

La famille de plans  $(hk.l)$  diffracte suivant la loi de Bragg :

$$\lambda = 2d_{hk.l} \sin\theta \quad (\text{équation 4})$$

$\alpha$  : angle de déclinaison  
 $\beta$  : angle d'azimut

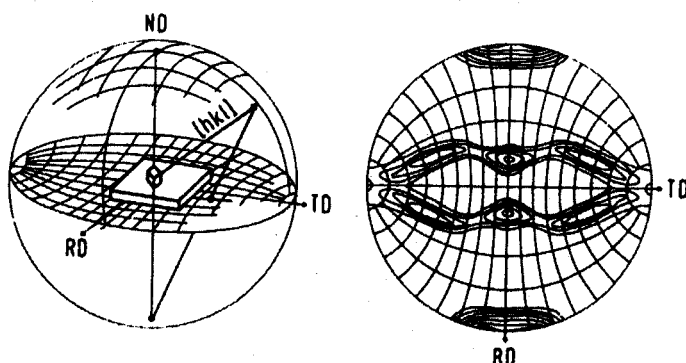


P : pôle  
 P' : projection  
 stéréographique de P

$$OP' = OP \operatorname{tg} \alpha/2$$

$$OP = 1$$

a)



b)

Figure 6 : a) Projection stéréographique, b) Représentation de la figure de pôle  $P_{hkl}(\alpha, \beta)$

Ainsi, dans un matériau polycristallin, où d'ordinaire les grains présentent des orientations très variées, il faut recourir à un appareillage spécifique animant l'échantillon de mouvements de rotation destinés à lui faire décrire toutes les orientations possibles pour amener les plans cristallographiques de la famille désirée en position de diffraction : c'est le rôle du goniomètre de texture.

La figure de pôle est représentée en projection stéréographique de la sphère des pôles. Ceci permet de visualiser le point d'intersection  $P'$  entre la droite reliant  $P$  au pôle sud de la sphère des pôles avec le plan équatorial  $\Pi$  (**fig. 6a**). Une figure de pôle tracée au moyen de lignes de niveaux qui relient les points d'isointensité, pour lesquelles la densité de plans  $\{hk.l\}$  est identique (**fig. 6b**).

On détermine expérimentalement la fonction de densité de pôles  $P$  en mesurant l'intensité de diffraction  $I_{hi}$  :

$$P_{hi}(y) = I_{hi}(\alpha, \beta) \cdot N_i \quad (\text{équation 5})$$

où  $N_i$  est un facteur de normalisation permettant de satisfaire l'équation suivante :

$$\oint P_{hi}(y) dy = 4\pi \quad (\text{équation 6})$$

$$\text{avec } dy = \sin\alpha \, d\alpha \, d\beta$$

### A3. Calcul de la Fonction de Densité des Orientations.

La relation fondamentale de l'analyse de texture qui relie la figure de pôles (ou plus précisément la densité de pôles  $P_{hi}(y)$ ) à la fonction de densité des orientations  $f(g)$  s'écrit :

$$P_{hi}(y) = \frac{1}{2\pi} \int_{hi//y} f(g) dg \quad (\text{équation 7})$$

où  $dg$  représente la rotation élémentaire autour de la direction commune  $hi // y$ , l'enregistrement d'un nombre suffisant de figures de pôles permet de calculer la fonction de densité des orientations. Pour pouvoir calculer la fonction de densité des orientations, il est nécessaire de passer par un formalisme mathématique permettant de relier la fonction de densité des pôles (fonction à deux variables  $\alpha$  et  $\beta$ ) à la fonction de densité des orientations (fonction à trois variables  $\varphi_1, \phi, \varphi_2$ ). Cette méthode, dite harmonique, fut largement développée par Bunge [Bunge (1993)].

#### A3.1. Développement en série de la fonction de densité de pôles.

Il est possible de développer les fonctions  $P_{hi}(y)$  en séries d'harmoniques sphériques  $K_l^n(y)$ . La fonction de densités de pôles  $P_{hi}(y)$  peut alors s'écrire de la façon suivante :

$$P_{hi}(y) = \sum_{l=0(2)}^{l=l_{\max}} \sum_{n=1}^{n=N(l)} F_l^n(hi) K_l^n(y) \quad (\text{équation 8})$$

Le développement en série est limité à un certain rang  $l_{\max}$  du fait de la convergence de telles séries. La centrosymétrie qui existe dans les classes de symétrie des cristallites ou qui est imposée par la loi de Friedel en diffraction a pour conséquence que seuls existent dans ce développement les termes d'indice  $l$  pair, ce qui explique la progression au pas de deux dans les sommations.

### A3.2. Développement de la fonction de densité des orientations sur la base des harmoniques sphériques généralisées.

De même que les fonctions densité des pôles peuvent être développées sur la base des harmoniques sphériques, la fonction de densité des orientations peut être développée sur la base des harmoniques sphériques généralisés :  $T_l^{\mu n}$ . Nous obtenons la formule suivante :

$$f(g) = f(\varphi_1, \phi, \varphi_2) = \sum_{l=0(2)}^{l=l_{\max}} \sum_{\mu=1}^{\mu=M(l)} \sum_{n=1}^{n=N(l)} C_l^{\mu n} T_l^{\mu n}(\varphi_1, \phi, \varphi_2) \quad (\text{équation 9})$$

Les coefficients  $C_l^{\mu n}$  sont les coefficients de texture à calculer à partir des figures de pôles et qui permettront le calcul effectif de  $f(\varphi_1, \phi, \varphi_2)$ .

### A3.3 Détermination de la fonction de densité des orientations

La symétrie cristalline joue un rôle important sur la structure des  $C_l^{\mu n}$ . Dans l'espace d'Euler, nous avons  $k$  rotations équivalentes pour une orientation  $g$  donnée. Pour les matériaux hexagonaux dont le groupe spatial est  $6/mmm$ , il y a  $k=12$  orientations équivalentes par l'opération du groupe ponctuel de symétrie cristalline.

Ceci entraîne deux conséquences :

- il n'est plus nécessaire de travailler sur tout l'espace d'Euler, mais sur l'espace fondamental, qui est ici (cas des symétries hexagonales compactes) :

$$0 \leq \varphi_1 \leq 2\pi$$

$$0 \leq \Phi \leq \pi/2$$

$$0 \leq \varphi_2 \leq \pi/3$$

- les coefficients  $C_l^{\mu n}$  ne sont plus tous indépendants. On peut tenir compte de cet effet en utilisant les harmoniques sphériques symétrisés  $\tilde{T}_l^{\mu n}(g)$  pour le développement en série de  $f(g)$ .



En reportant dans l'équation fondamentale les développements en série des  $P_{hi}(y)$  et de  $f(g)$ , nous obtenons un système linéaire d'équations entre les coefficients correspondants :

$$F_l^n(hi) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{\mu=1}^{\mu=M(l)} C_l^{\mu n} \check{K}_l^{\mu}(hi) \quad (\text{équation 10})$$

où  $\check{K}_l^{\mu}(hi)$  est un harmonique sphérique, symétrisé pour la symétrie cristalline.

A couple  $(l,n)$  fixé, une équation du type  $F_l^n(hi)$  contient  $M(l)$  inconnues, les coefficients  $C_l^{\mu n}$ . Il faut donc au moins  $M(l)$  équations pour déterminer ces inconnues, c.-à-d. considérer  $M(l)$  plans cristallographiques  $hi$  indépendants ou  $M(l)$  figures de pôles complètes.

La figure suivante (fig.7) indique le nombre de figures de pôles à mesurer pour réaliser une analyse jusqu'au rang  $l_{\max}$  donné selon la symétrie cristalline.

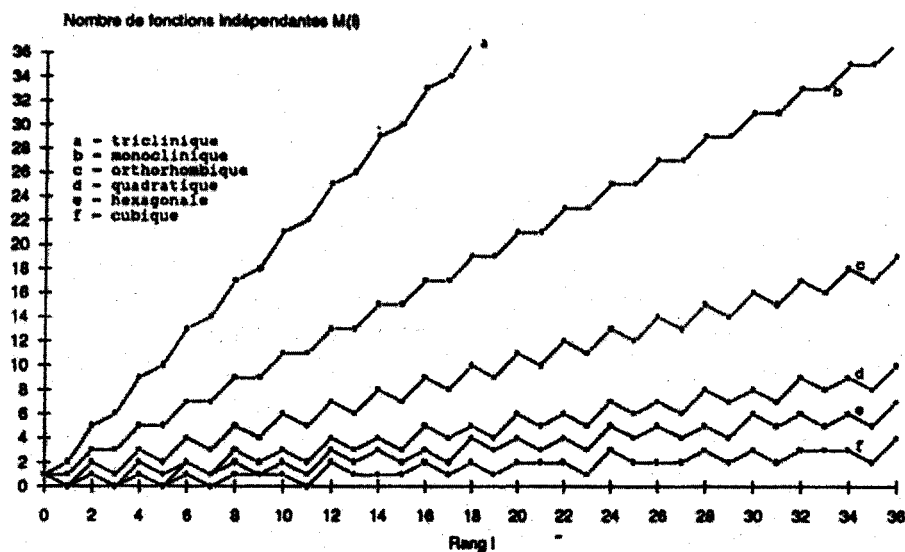


Figure 7 : Nombre de figures de pôles nécessaires  $M(l)$ , en fonction de  $l_{\max}$ , selon la symétrie cristalline.

Les calculs précédents sont valables si on dispose de figures de pôles complètes pour réaliser l'analyse. Que l'on travaille en réflexion ou en transmission, les figures de pôles mesurées ne sont jamais complètes. Nous ne pouvons pas calculer directement les coefficients  $F_l^n(hi)$  à partir des figures de pôles incomplètes.

#### Cas des figures de pôles incomplètes :

Mais, la méthode harmonique permet d'utiliser des figures de pôles incomplètes. Supposons que nous ayons  $k$  figures de pôles  $I_{hi}(y)$  ( $1 \leq i \leq k$ ), chacune mesurée sur un domaine

B (par exemple,  $y=\{\alpha,\beta\}$  tels que  $0\leq\beta\leq 360^\circ$  et  $0\leq\alpha\leq 80^\circ$ ). Nous appelons  $P_{hi}(y)$  la densité de pôles que l'on peut calculer en connaissant les coefficients  $C_i^m$  issus de la résolution de systèmes d'équations (12). La méthode consiste à minimiser l'expression suivante :

$$\sum_{i=1}^{i=k} \int \left[ N_i I_{hi}(y) - P_{hi}(y) \right]^2 dy = Min \quad (\text{équation 13})$$

Dans le cas de figures de pôles incomplètes, non seulement les coefficients  $C_i^m$  sont inconnus, mais également les coefficients de normalisation  $N_i$ . En écrivant que chaque dérivée partielle par rapport à une inconnue de l'expression 13 doit être égale à zéro, on forme un système d'équations linéaires à résoudre.

### A3.3. Critères d'analyse

La fiabilité de la méthode doit être évaluée à partir de critères simples. Dans le cas qui nous intéresse, les figures de pôle complètes recalculées à partir des figures de pôles incomplètes vont nous permettre d'estimer les incertitudes.

Deux coefficients d'erreurs Err0 et Err1 sont utilisés ici, avec les définitions suivantes :

$$Err0 = \frac{100}{N_{RP}} \sum_{\alpha=0}^{\alpha=\alpha_{max}} \sum_{\beta=0}^{\beta=2\pi} \frac{|P_{hi}^{exp}(\alpha, \beta) - P_{hi}^{rec}(\alpha, \beta)|}{P_{hi}^{exp}(\alpha, \beta)} \quad \forall P_{hi}^{exp}(\alpha, \beta) \geq \varepsilon \quad (\text{équation 14})$$

$$Err1 = \frac{100}{N_{RP1}} \sum_{\alpha=0}^{\alpha=\alpha_{max}} \sum_{\beta=0}^{\beta=2\pi} \frac{|P_{hi}^{exp}(\alpha, \beta) - P_{hi}^{rec}(\alpha, \beta)|}{P_{hi}^{exp}(\alpha, \beta)} \quad \forall P_{hi}^{exp}(\alpha, \beta) \geq 1 \quad (\text{équation 15})$$

où  $N_{RP}$  est le nombre de mesures dont la valeur expérimentale est supérieure ou égale à  $\varepsilon$  ( en pratique,  $\varepsilon=0.01$ ) et  $N_{RP1}$  le nombre de mesures dont la valeur expérimentale est supérieure ou égale à 1 (valeur de densité pour texture isotrope).

## A4. Représentation des fonctions densité des orientations

Il est intéressant d'un point de vue pratique de considérer les paramètres d'orientation (angles d'Euler  $\varphi_1, \phi, \varphi_2$ ) comme les coordonnées cartésiennes d'un point dans un espace tridimensionnel, qui est alors appelé espace des orientations ou espace d'Euler.

L'orientation d'un cristal, donnée par l'orientation du repère  $K_B$  par rapport à  $K_A$  est représentée par un point dans l'espace d'Euler et vice versa.

La fonction de densité des orientations est donc une fonction de densité (au sens statistique) dans l'espace tridimensionnel des orientations. Elle peut être représentée par des surfaces d'équidensité dans cet espace tridimensionnel, comme schématisé à la **figure 9** et représenté pour quelques textures typiques à la **figure 8**. Dans cette dernière figure une seule surface d'équidensité est représentée dans chaque cas.

On imagine aisément qu'il est en pratique quasi-impossible de dessiner plus qu'une telle surface à la fois. Ce mode de représentation n'est dès lors pas adapté à une représentation quantitative d'une fonction densité des orientations complète. Pour ce faire, on réalise des coupes à  $\phi_1$  (ou  $\phi_2$ ) = constante dont le principe est montré à la **figure 9**.

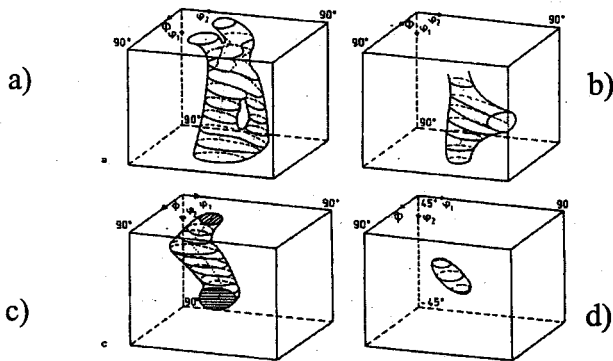


Figure 8 : Exemples de fonction densité des orientations représentées par des surfaces d'équidensité.

a) acier recristallisé; b) acier laminé à froid; c) cuivre laminé à froid; d) laiton laminé à froid

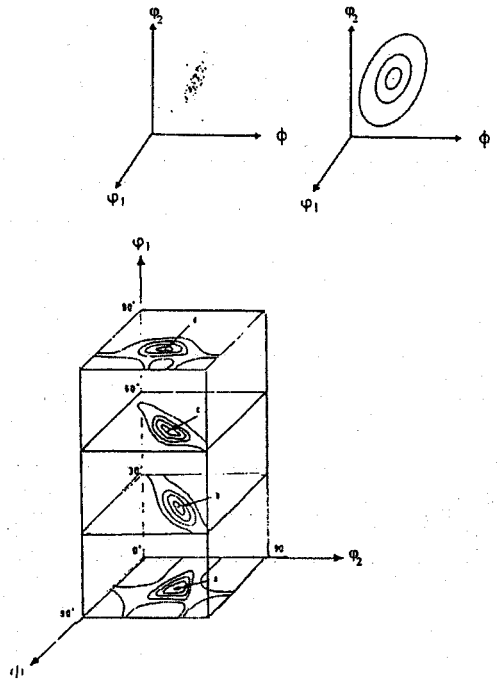


Figure 9 : Représentation tridimensionnelle d'une fonction densité des orientations.

**Références Bibliographiques :**

- Bunge (1993)** H.J. Bunge, *Texture Analysis in Materials Science, Mathematical Methods*, ed. Cuvillier Verlag Göttingen
- Hjelen (1993)** J. Hjelen, R. Ørsund, E. Hoel, P. Runde, T. Furus and E. Nes, *EBSP, progress in technique and applications, Textures and Microstructures, Vol. 20*, pp. 29-40 (1993)
- Juul Jensen (1993)** D. Juul Jensen, *Automatic EBSP analysis for recrystallization studies, Textures and Microstructures, Vol. 20*, pp. 55-65 (1993)
- Kunze (1993)** K. Kunze, S.I. Wright, B.L. Adams and D.J. Dingley, *Advances in automatic EBSP single orientation measurements, Textures and Microstructures, Vol. 20*, pp. 41-54 (1993)
- Schwarzer (1993)** R. A. Schwarzer, *The determination of local texture by electron diffraction – A tutorial review, Textures and Microstructures, Vol. 20*, pp. 7-27 (1993)