

University of Groningen

Deformation, Cracking and Formability of Zn-Al-Mg Coatings

Ahmadi, Masoud

DOI:
[10.33612/diss.202021172](https://doi.org/10.33612/diss.202021172)

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version
Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:
2022

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):
Ahmadi, M. (2022). *Deformation, Cracking and Formability of Zn-Al-Mg Coatings: Methodology, Optimization and Application*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen. <https://doi.org/10.33612/diss.202021172>

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

Summary and outlook

8.1 Thesis summary

Zn-Al-Mg coatings are important materials in coatings technology that are widely utilized in automotive and construction applications. These coatings which are mainly produced by the hot-dip galvanization process, offer excellent corrosion resistance and anti-galling performance for the steel substrates. In contrast, they currently exhibit a high cracking tendency when subjected to plastic deformation and forming processes. The formability properties of these coatings are limited due to the adverse and severe cracking. The generated cracks with a large opening on the coating surface enable the penetration of corrosive media into the coating and subsequently can facilitate the corrosion and degradation of the steel substrates. Therefore, the mechanical integrity and durability of Zn-Al-Mg coated steel sheets are strongly related to the fundamental understanding of the deformation, cracking behavior and formability of the coating. Only through such comprehension, it is possible to generate a scientific guideline to improve the cracking resistance of these coatings.

The principal aims of the present thesis were therefore (1) to unravel the origin and mechanism of cracking in Zn-Al-Mg coatings, (2) to resolve the long-lasting cracking and formability problems associated with these coatings. To these ends, comprehensive evaluations on the structure-properties relationship were realized in this thesis. Step-wise and dedicated research works were carried out and in the light of the knowledge obtained, synergic solutions and strategies were applied in order to accomplish crack-resistant and highly-formable Zn-Al-Mg coatings. The following paragraphs summarize the main findings and contributions of the thesis chapters:

In **Chapter 3**, the microstructural components of Zn-Al-Mg coatings were studied comprehensively. It was shown that the microstructure of these coatings consisted of three typical constituents, namely primary zinc, coarse binary eutectic and fine ternary eutectic. The binary eutectic comprised zinc and MgZn_2 platelets

whereas the ternary eutectic was composed of fiber-like zinc, MgZn_2 and aluminum. By performing in-situ deformation tests, it was revealed that the binary eutectic was the main initiation site for the cracks within the coatings. Based on the nanoindentation results, despite possessing the highest yield strength/hardness, the binary eutectic was shown to exhibit the lowest micro-ductility (formability) among the microstructural components. Furthermore, a predictive and quantitative methodology was developed based on crystallographic orientation and micromechanical properties. Utilizing the methodology, it was found that the primary Zn grains with a low Schmid factor ($m < 0.32$) and a low local strain hardening exponent ($n < 0.33$) as a consequence of their mechanical anisotropy and unfavorable orientation experienced high cracking tendency during deformation. Employing digital image correlation and finite element analysis, it was found that substantial heterogeneous deformation took place within the coating leading to stress/strain localization mostly in the binary eutectic where most of the cracks nucleated. In contrast, the ternary eutectic could accommodate the plastic deformation without cracking. In this chapter, the exact mechanism of cracking was elucidated emphasizing the role of binary eutectic as the dominant initiation sites, and unfavorably oriented primary zinc grains (i.e. exhibiting low n and m values) as the propagation sites for cracking.

Significant cracking resistance in Zn-Al-Mg coatings was attained by tailoring the coating microstructure in **Chapter 4**. It was shown that by eliminating the binary eutectic in the microstructure, cracking resistance and formability properties were enhanced substantially. It was revealed that the microstructure of the coating, comprising of primary zinc and ternary eutectic, effectively accommodated the applied strain without cracking until fracture of steel substrate. The absence of binary eutectic and the activation of abundant deformation mechanisms in the coating microstructure promoted local compatible plastic deformation and inhibited early damage. Effective slip transfer was unveiled by activation of pyramidal $\langle c+a \rangle$ slip in addition to primary dislocation slip systems. Utilizing scanning transmission electron microscopy, quantitative dislocation density determination was realized in this chapter. The strengthening and plasticity mechanisms of the tailored BE-free coating were extensively studied. Nano-precipitation hardening was found as the dominant strengthening mechanism followed by dislocation and grain boundary strengthening contributions. The theoretical elucidations on the cracking resistance mechanisms in Zn-Al-Mg coatings were incorporated in this chapter.

In **Chapter 5**, the influence of steel substrates on the cracking and formability of Zn-Al-Mg coatings was extensively investigated by means of in-situ microscopy testing. It was demonstrated that Zn-Al-Mg coatings on a high strength low-alloy (HSLA) steel exhibited higher cracking extent compared to that on an interstitial

free (IF) steel. Discontinuous yielding by Lüders banding in the HSLA steel substrate was identified as a detrimental factor for cracking resistance. Whereas, the IF steel substrate provided a more compatible deformation with the coatings and led to an enhanced cracking performance. Strain mapping by digital image correlation technique was conducted on the coated steel specimens across length scales. As a result, the importance of localization of strain and surface roughening of the substrates was highlighted. It was identified that discontinuous yielding by Lüders banding in the HSLA steel substrates induced high surface roughening during the tensile test and consequently led to heterogeneous deformation, facilitating crack formations within the coatings. Therefore, it was discovered that the mechanical properties of the steel substrates affected the extent of cracking within the coatings. The substrate with more uniform ductility (i.e. the IF steel) provided a more compatible deformation within the coatings and led to better cracking performance compared to the HSLA substrate exhibiting Lüders banding (discontinuous yielding). Proper selection of steel substrate was suggested to boost the formability of the coating/substrate as a whole system.

The long-lasting cracking drawback of Zn-Al-Mg coatings was notably resolved in **Chapter 6**. The cracking resistance of Mg-alloyed zinc coatings was substantially enhanced by applying crystallographic texture control. It was demonstrated that in Zn-Al-Mg coatings with tailored sharp (0001) fiber texture, transgranular crack propagation through primary zinc grains was almost completely prevented. Moreover, simultaneous texture and microstructure control ultimately offered a nearly crack-free Zn-Al-Mg coating during tensile deformation, because the absence of binary eutectic prevented crack nucleation and the (0001) fiber texture suppressed crack propagation. This chapter resulted in novel insights and practical strategies to realize next-generation highly-formable and durable Zn-Al-Mg coatings.

And finally in **Chapter 7**, another important microstructural aspect, namely, grain refinement was the focus of the investigation. The findings in this chapter revealed that the coating with fine grain microstructure possessed higher ductility and cracking resistance, whereas the coating with coarse grain microstructure induced more transgranular cracking during deformation. Moreover, primary zinc grain refinement was shown to decrease the fraction of coarse deformation twins that serve as undesirable sites of micro-cracking. In particular, both deformation mechanisms and cracking behavior were found to be grain size-dependent in Zn-Al-Mg coatings. Thus, it was demonstrated that grain refinement could additionally contribute to the enhancement of cracking resistance and formability of these coatings.

8.2 Outlook and future research

In accordance with the comprehensive and promising findings, methodology and approaches realized in this thesis, an exciting basis is now available for future research works in the field of Zn-based coatings. The outcome and ideas of the present thesis (i.e. controlling phases, texture, grain sizes and coating-substrate combination) are not limited to hot-dip galvanized Zn-Al-Mg coatings and are potentially applicable to a wide range of Zn-based alloys and other HCP materials with complex and anisotropic microstructural features and mechanical properties. Therefore, this thesis is believed to inspire future research and developments on Zn-based coatings. Some of the proposed research aspects can be stated as follows:

- The results and findings of the present thesis offer a rich foundation for computational studies. The quantitative and predictive methodology in **Chapter 3**, can be implemented in finite element simulations in order to further scrutinize the mechanical behavior of Zn-based thin films and coatings.
- The multi-axial stress generated within the coating (especially at the complex eutectic regions) is difficult to assess experimentally. Crystal plasticity finite element modeling coupled with effective damage and fracture models can further shed light on the micromechanics of the coating subjected to deformation.
- The influence of quaternary alloying elements including Si, Ti, Zr, Bi, etc. on the microstructure and cracking behavior of Zn-Al-Mg coatings can be investigated.
- As it was demonstrated in **Chapter 6**, by fostering (0001) fiber texture, Zn-Al-Mg coatings deliver outstanding cracking resistance and formability properties. Additionally, the effect of such texture control on other properties of the coatings (e.g. corrosion resistance) can be the subject of further studies.
- Zn-Al-Mg coatings produced on steel substrate are normally painted for automotive applications. The entire system of substrate/coating/paint can be evaluated in forming processes with a special focus on the interfacial properties. The practical solutions of this thesis can be applied and consequently evaluate the performance of such a composite system.

Samenvatting

Zn-Al-Mg coatings zijn belangrijke materialen in coating technologie die veel gebruikt worden in de automotive industrie en constructie toepassingen. Deze coatings worden voornamelijk geproduceerd door middel van thermisch verzinken, en bieden een uiterst goede bescherming tegen corrosie en vreten van het stalen substraat. Echter, tijdens het vormen zijn Zn-Al-Mg coatings vatbaar voor scheurvorming wanneer het plastisch gedeformeerd wordt. Als gevolg van de hevige scheurvorming tijdens deformatie is de vormbaarheid van deze coatings beperkt. Scheurvorming veroorzaakt openingen in de coating waardoor corrosieve media in de coating kan penetreren, wat vervolgens leidt tot corrosie en degradatie van het stalen substraat.

Er is dus een sterk verband tussen de mechanische integriteit en duurzaamheid van Zn-Al-Mg gecoate staalplaten en fundamentele kennis over deformatie, scheurvorming en vormbaarheid van de coating. Met meer kennis over dit verband is het mogelijk een wetenschappelijke richtlijn op te stellen om de bestendigheid tegen scheurvorming te verbeteren van deze coatings.

Het voornaamste doel van dit onderzoek was (1) om de oorzaak en mechanisme van scheurvorming in Zn-Al-Mg coatings te ontrafelen, (2) om de langdurige problemen van scheurvorming en vormbaarheid van deze coatings op te lossen. Dit is gedaan met behulp van uitgebreide evaluaties van de relatie tussen structuur en eigenschappen. Met stapsgewijs en gericht onderzoek is er wetenschappelijke kennis opgedaan, waarmee synergetische oplossingen en strategieën toegepast konden worden om een vormbare en scheur-resistente Zn-Al-Mg coating te realiseren. De volgende paragrafen vatten de belangrijkste bevindingen en bijdrages van dit onderzoek samen:

In **hoofdstuk 3** zijn de microstructurele componenten van Zn-Al-Mg coatings uitgebreid onderzocht. Aan de hand van de verkregen resultaten werd het duidelijk dat de microstructuur van deze coatings bestaat uit 3 componenten, namelijk primair

zink, grof binair eutecticum en fijn ternair eutecticum. Wat de samenstelling betreft bestaat het binair eutecticum uit zink en $MgZn_2$ deeltjes, en het ternair eutecticum uit vezelig zink, $MgZn_2$ en aluminium deeltjes. Door middel van in-situ deformatie testen werd aangetoond dat scheuren voornamelijk initiëren in het binair eutecticum in de coating. Aan de hand van de nanoindentatie resultaten kan er gezegd worden dat het binair eutecticum de laagste micro vervormbaarheid vertoont van de drie microstructurele componenten, ondanks de hoogste vloeigrens/hardheid. Verder is er een kwantitatieve methodologie ontwikkeld gebaseerd op de kristal oriëntaties en micromechanische eigenschappen. Met deze methodologie werd aangetoond dat korrels met een lage Schmid factor ($m < 0.33$) en een lage lokale deformatiehardingsexponent ($n < 0.33$) vanwege de mechanische anisotropie en ongunstige oriëntatie een grote scheuroneiging hebben tijdens deformatie. Digital Image Correlation (DIC) en Finite Element Analysis (FEM-analyse) toonden aan dat er substantiële heterogene deformatie plaatsvindt in de coating, wat vervolgens leidt tot trek/rek lokalisatie in het binair eutecticum, waar de meeste scheuren initieerden. Aan de andere kant kon het ternair eutecticum plastische deformatie wel weerstaan zonder scheurvorming. Dit hoofdstuk heeft uiteindelijk het exacte mechanisme van scheurvorming verhelderd met de rol van het binair eutecticum als dominante initiatieplek voor scheurvorming en de rol van ongunstig georiënteerde zinkkristallen als propagatieplekken voor scheurvorming.

Significante weerstand tegen scheurvorming werd bereikt met het aanpassen van de microstructuur van de coating in **Hoofdstuk 4**. Door het elimineren van het binair eutecticum in de microstructuur werd de vormbaarheid en weerstand tegen scheurvorming aanzienlijk verbeterd. Verder werd er aangetoond dat de microstructuur van de coating, bestaande uit primair zink en ternair eutecticum, de rek effectief kan accommoderen zonder te scheuren tot het scheuren van het stalen substraat aan toe. Het ontbreken van het binair eutecticum had als gevolg dat plastische deformatie zonder scheurvorming plaats kon vinden door het activeren van andere deformatie mechanismes. Dit kon door de piramidale $\langle c+a \rangle$ slip bewerkstelligd worden, naast de primaire dislocatie slip systemen. Met behulp van een STEM-microscopie is de kwantitatieve dislocatie dichtheid bepaald in dit hoofdstuk. De versterkende en plastische mechanismes van de aangepaste BE-vrije coating zijn uitgebreid bestudeerd en harden door nanoprecipitatie kan gezien worden als het dominante versterkende mechanisme gevolgd door het versterkend effect van dislocaties en korrelgrenzen. Verder is er in dit hoofdstuk een theoretische uitleg gegeven over de mechanismes die voor de weerstand tegen scheurvorming in Zn-Al-Mg coatings.

In **hoofdstuk 5** is het effect van het stalen substraat op scheurvorming en vormbaarheid van Zn-Al-Mg coatings uitgebreid onderzocht door middel van in-situ microscopie. Uit de resultaten is gebleken dat Zn-Al-Mg coatings op een *high strength-low alloy* (HSLA) staal een grotere nijging hebben om te scheuren vergeleken met Zn-Al-Mg coatings op *interstitial free* (IF) staal. Lüders banden zorgen voor discontinue rek in het HSLA stalen substraat, wat een nadelig effect heeft op scheurvorming in de coating. Aan de andere kant, het stalen IF-substraat gaf een meer compatibele deformatie in de coating wat een positief effect had op het weerstaan van scheurvorming. Met behulp van Digital Image Correlation (DIC) kon de rek van gehele exemplaren in kaart worden gebracht. Dat liet zien dat er lokale rek in het staal zit en kon ook het belang van oppervlakteruwheid worden belicht. Verder werd het ook duidelijk dat lokale rek door Lüders banden in het HSLA stalen substraat een hoge oppervlakteruwheid induceerde tijdens de rektest, wat vervolgens tot heterogene deformatie leed en scheurvorming in de coating initieerde. Hiermee werd aangetoond dat de mechanische eigenschappen van de stalen substraten scheurvorming in de coatings beïnvloeden. Het stalen substraat met een hogere mate van vormbaarheid (IF-staal) zorgde voor een uniforme deformatie in de coating, wat het resistenter maakte tegen scheurvorming vergeleken met het HSLA stalen substraat met Lüders banden (discontinue rek). Vandaar dat een zorgvuldige keuze van het stalen substraat aan te bevelen is om de vormbaarheid van het coating-substraat systeem te bevorderen.

Hoofdstuk 6 heeft een oplossing geïmplementeerd voor het langdurige scheurprobleem in Zn-Al-Mg coatings. De resistentie tegen scheurvorming kon aanzienlijk verbeterd worden door het toepassen van kristallografische textuur controle. Daarmee werd gedemonstreerd dat Zn-Al-Mg coatings met een aangepaste (0001) vezeltextuur transgranulaire scheurvorming door primaire zinkkorrels nagenoeg compleet kunnen voorkomen. Verder werd met textuur en microstructuur controle een zowat scheurvrije Zn-Al-Mg coating bereikt tijdens rek deformatie, als gevolg van het ontbreken van het binair eutecticum die scheurvorming initieert en als gevolg van de (0001) vezelstructuur die scheurpropagatie voorkomt. Uiteindelijk heeft dit hoofdstuk geleid tot nieuwe inzichten en praktische strategieën om de volgende generatie vormbare en duurzame Zn-Al-Mg coatings te realiseren.

In het laatste hoofdstuk, **hoofdstuk 7**, lag de nadruk voornamelijk op het begrip korrelverfijning. De resultaten in dit hoofdstuk toonden aan dat coatings met een fijne microstructuur een hogere vervormbaarheid en scheurweerstand hebben vergeleken met coatings met een grove microstructuur, die meer transgranulaire scheuren vertonen tijdens deformatie. Door het verfijnen van primaire zinkkorrels kon de fractie grove deformatie tweelingen verminderd worden, waar micro scheurtjes gevormd worden. Het is gebleken dat zowel deformatiemechanismes als

scheurvorming afhankelijk zijn van de korrelgrootte in Zn-Al-Mg coatings. Daarmee is er gedemonstreerd dat korrelverfijning ook een bijdrage zou kunnen leveren aan het verbeteren van de scheurweerstand en vormbaarheid van deze coatings.