Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

Two-phases materials microstructure effects on XEC and XRD stresses analysis

Influence d'une microstructure biphasée sur les CER et l'analyse des contraintes par DRX

Fréour S.*, Gloaguen D.*, François M.**, Guillén R.*

** Laboratoire d'Applications des Matériaux à la Mécanique (LAMM)*
L.A.M.M. – C.R.T.T. – Boulevard de L'Université – B.P. 406 – 44602 Saint Nazaire Cedex
Tel. : +33 02.40.17.26.20 Fax : +33 02 40 17 26 18 E mail : admilamm@lamm.univ-nantes.fr

*** Laboratoire des Systèmes Mécaniques et d'Ingénierie Simultanée (LASMIS)*
L.A.S.M.I.S. – 12 Rue Marie Curie – BP 2060 – 10010 Troyes

Keywords : X-Ray Elasticity Constants (XEC), two-phases materials, residual stresses, self consistent models.

Mots clés : Constantes Elastiques Radiocristallographiques (CER), matériaux biphasés, contraintes résiduelles, modèles autocohérents.

Abstract

In multiphase materials, X-Ray Elasticity Constants (XEC) depend on the nature and volume fractions of each phases constituting the polycrystal. These XEC play a leading role during X-Ray diffraction stresses analysis. Self consistent scale transition models have been developed in order to simulate the XEC characteristics of several two-phases alloys. This work makes it possible the quantitative study of the influence due to the second phase on the results of X-Ray stresses analysis performed on the first one.

Résumé

Les Constantes Elastiques Radiocristallographiques (CER) dépendent de l'état de biphasage d'un système, c'est à dire de la nature et de la proportion de chacune des phases présentes dans le matériau. Or, les CER jouent un rôle primordial dans les méthodes de détermination des contraintes pseudomacroscopiques par Diffraction des Rayons X (DRX). Des modèles de calcul micromécaniques ont été développés, afin d'effectuer le calcul des CER au sein de divers matériaux biphasés. Ceci à rendu possible, l'analyse quantitative des effets exercés par le biphasage sur le résultat d'une analyse de contrainte par DRX.

Overview

Experimenters require proportionality constants, called X-Ray Elasticity Constants, (XEC) in order to determine the residual stress state of a material from X-Ray strain measurements.
Apart from effects due to crystallites morphology or orientation (crystalline texture), XEC depend on several parameters such as the diffracting planes chosen, the nature of each phase through their elastic mechanical properties, and the volume fraction of the different phases constituting the multi phase polycrystal. Methods leading to XEC values determination are well known in the case of single-phase materials. Experimental and scale transition simulation schemes lead to concordant numerical results in this particular case. The study of two-phases materials requires more sophisticated means. To our knowledge, no procedure has been yet proposed in order to determine the XEC of two-phases materials. Knowing the volume fraction and the mechanical behaviour of the single crystal of each phase, one needs to calculate the XEC necessary for his experiments. In

fact, it is usually assumed that XEC remain the same in two-phases materials as in single-phase ones. This hypothesis yields straightforwardly to introduce the classical, available in the literature, values of single-phase XEC in the "$\sin^2\psi$" relation, in order to process the experimental pseudo macro strain data obtained through measures in two-phases samples, e. g. [9-11]. This methods implicitly neglects the effects of the second phase on the mechanical elastic behaviour of the diffracting volume. The aim of this work consists in the evaluation of the two-phases effect on the XEC values and its consequences on the stresses determined by XRD analysis in cubic crystallographic structures.

A one site self consistent calculation scheme has been developed in order to reproduce the diffracting volume behaviour of two-phases samples. This model is based on the treatment of the elastic interactions of spherical anisotropic crystallites embedded in an infinitely extended elastically isotropic continuum (matrix), in accordance with the formalism described by Kröner, Eshelby and Morris [5, 6, 7, 8, 15].

This model has been used to simulate the cases of several two-phases material : duplex steels, aluminium – β silicon carbide Metal Matrix Composites (MMC), aluminium – diamond carbon composites, copper – Fe_α alloys. The different systems have been especially chosen in order to separate the effects of the following parameters on XEC values : single crystal anisotropy and the ratio of the elastic moduli of the two considered phases.

Simulations results (cf. tables 2–5) show that the XEC of a given phase generally vary with the volume fraction of the phase in a given system, and with the nature of the second phase. In physical terms, this discrepancy between XEC of a phase, calculated in a single-phase material and in a two-phases sample can be explained by the elastic interactions existing between the polycrystalline matrix and any crystallite. In fact, the grains of α diffracting volume often have α and β grains as first neighbours simultaneously, as shown on figure 1. The presence of these first neighbours β grains generates interactions which affect α diffracting volume elastic mechanical behaviour.

In the cases of the aluminium – β SiC MMC and Fe_α – copper alloys, XEC calculated are strongly dependent on each phase volume fraction. This property, characteristic to such two-phases polycrystals, results from the strong mechanical elastic heterogeneities existing between the phases. On the opposite, if the macroscopic behaviour of the two phases is similar, such as in the case of duplex steels, the XEC do not vary significantly with the volume fraction of each phase.

Aluminium – diamond like carbon systems, illustrates another property. In fact, diamond XEC remains almost constant, in spite of the large mechanical discrepancies existing between the two phases. This property has been attributed to diamond single crystal isotropy. In consequence, a phase with elastically isotropic single crystal keeps its XEC constant, whatever the two-phases state of the polycrystal in which it is embedded. On the opposite, results obtained on copper underline that multi phases effects on XEC arise in the case of strongly anisotropic diffracting phases.

As mentioned before, the usual assumption consists in introducing single phase XEC values in order to process numerically the strains measured in two-phases polycrystals. The results given by our simulations demonstrate that this approach leads to an approximation of the polycrystalline sample mechanical effective behaviour. In consequence, this assumption generates a systematic error δ on the determined stresses.

As part of a residual stresses analysis through XRD, the relative error on stresses values due to experimental and data processes generally remains between 5% and 15% for the considered phases. Figure 2 shows that the systematic relative error δ resulting from the usual assumption is often lower than 5% but may reach 20% in particularly unfavourable cases.

However, it is necessary to take into account effects due to two-phases interactions in order to minimize the deviation between the residual stresses determined through XRD experiments and true stresses in the sample.

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

1 - Introduction

La détermination des contraintes résiduelles à l'aide de la diffraction des rayons X est devenue une technique classique en sciences des matériaux. Cette méthode résulte de l'application des lois de la mécanique des milieux continus à la jauge de déformation que constitue la distance interréticulaire d'une famille de plans {hkl} en position de diffraction. Seuls les états de déformations sont directement accessibles au travers de cette méthode. Cependant, l'équation dite « en $\sin^2\psi$ » fournit une relation entre les états de déformations et de contraintes pseudomacroscopiques existant au sein de la phase qui participe au phénomène de diffraction. Cette relation en $\sin^2\psi$ fait intervenir des coefficients de proportionnalité entre déformations et contraintes [1]. Ces coefficients notés ½ S_2 et S_1 sont communément appelés Constantes d'Elasticité Radiocristallographiques ou CER.
Si on néglige les effets de texture, la valeur des CER dépend du choix de la famille de plans diffractant, de la nature de chaque phase du matériau, par l'intermédiaire de leurs propriétés mécaniques élastiques, et de la fraction volumique des phases en présence. Les méthodes permettant d'accéder aux valeurs des CER dans les matériaux monophasées sont bien connues et relèvent soit de méthodes expérimentales, soit de modèles numériques de transition d'échelle [2-8].
Un certain nombre de précautions sont nécessaires lors de l'étude d'un matériau biphasé. Connaissant les fractions volumiques et le comportement mécanique du monocristal de chacune des phases, il est possible de calculer les CER nécessaires à l'expérimentateur. En effet, à notre connaissance, aucune démarche expérimentale n'a été proposée à ce jour pour la détermination des CER au sein de ces matériaux. Cependant, on suppose généralement que les CER d'une phase donnée, prise dans un matériau biphasé, sont identiques aux CER de la phase pure. Cette hypothèse conduit tout naturellement à introduire les CER des composés monophasés dans la relation « en $\sin^2\psi$ », afin de déterminer les contraintes pseudomacroscopiques existant au sein d'un échantillon biphasé [9-11]. Cette méthode néglige implicitement l'influence de la seconde phase sur le comportement élastique du volume diffractant du matériau. L'objectif de cette étude consiste précisément à évaluer de façon quantitative l'influence du biphasage sur les valeurs des CER et par voie de conséquence, l'impact du biphasage sur les contraintes mesurées par DRX.

2 - Influence de l'état de biphasage d'un système sur ses CER – modèle autocohérent élastique à 1 site

Un modèle autocohérent à un site a été développé afin de simuler le comportement du volume diffractant de matériaux biphasés ($\alpha + \beta$). Ce modèle est basé sur le traitement de l'interaction élastique de cristaux sphériques anisotropes plongés dans une matrice infinie, homogène et élastiquement isotrope, en accord avec les formalismes décrits par Kröner, Eshelby et Morris [5, 6, 8,12]. Ce modèle a permis de déterminer les valeurs de CER dans un grand nombre de biphasés aux caractéristiques différentes. On a ainsi traité le cas des aciers austéno-ferritiques, de même que celui de Composites à Matrice Métallique constitués par exemple d'aluminium et de carbure de silicium β. Les différents systèmes ont été spécialement choisi afin d'identifier l'influence des paramètres suivants sur la valeur des CER : l'anisotropie élastique du monocristal et le rapport des modules élastiques des deux phases en présence.
Le comportement élastique des matrices biphasées a été simulé grâce à un calcul préliminaire sur 4000 cristallites. Les constantes élastiques micromécaniques employées pour modéliser les monocristaux de chacune des phases impliquées sont données dans le tableau 1. Le comportement du volume diffractant a ensuite été modélisé, pour chacune des phases et pour différentes compositions du matériau (α+β) : 0% β, 25% β, 50% β, 75% β et 100% β (ce qui correspond au cas limite de l'inclusion d'Eshelby). A titre d'exemple, on a rassemblé certains résultats obtenus pour les CER dans les tableaux 2 à 5.

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

On rappelle que dans le cas d'une phase cubique, les CER peuvent toujours être exprimées de la façon suivante [15] : $\frac{1}{2}S_2(hkl) = \frac{1}{2}S_2(h00) - 3\Gamma(hkl)S$ (1)

Où le paramètre d'orientation Γ s'écrit, $\Gamma(hkl) = \frac{h^2k^2 + h^2l^2 + k^2l^2}{(h^2 + k^2 + l^2)^2}$ (2)

$S = \frac{1}{2}S_2(hhh)[A_{RX} - 1]$ (3) avec A_{RX} le coefficient d'anisotropie aux rayons X de la phase.

Tableau 1 : Constantes d'élasticité et coefficient d'anisotropie des monocristaux [1, 10, 13,14]
Table 1 : Single crystals elastic constants and anisotropy ratio [1, 10, 13, 14]

	Austénite	Ferrite	Aluminium	SiC β	C – diamant	Cuivre
c11 [TPa]	0.1975	0.2374	0.1082	0.3523	1.0200	0.1684
c12 [TPa]	0.1245	0.1347	0.0613	0.1404	0.2500	0.1214
c44 [TPa]	0.1220	0.1164	0.0285	0.2329	0.3900	0.0755
A	3.34	2.27	1.23	2.20	1.01	3.20

Tableau 2 : CER déterminées dans un acier austéno-ferritique, en fonction des proportions respectives de chacune des phases
Table 2 : XEC simulated in duplex steels, as a function of the proportion of each phase

Fraction volumique de la phase diffractant		100%	75%	50%	25%	0%
Austénite	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	8.77	8.74	8.70	8.66	8.61
	S [10^{-6}/MPa]	3.68	3.63	3.57	3.52	3.45
Ferrite	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	7.31	7.33	7.36	7.38	7.40
	S [10^{-6}/MPa]	2.29	2.33	2.36	2.40	2.43

Tableau 3 : CER déterminées dans un CMM aluminium - carbure de silicium β, en fonction des proportions respectives de chacune des phases
Table 3 : XEC simulated in aluminum - β silicon carbide MMC, as a function of the proportion of each phase

Fraction volumique de la phase diffractant		100%	75%	50%	25%	0%
Aluminium	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	19.99	19.77	19.54	19.37	19.26
	S [10^{-6}/MPa]	1.71	1.35	0.98	0.68	0.50
SiC β	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	3.63	3.80	4.00	4.18	4.32
	S [10^{-6}/MPa]	1.15	1.39	1.66	1.91	2.08

Tableau 4 : CER déterminées dans un biphasé ferrite - cuivre, en fonction des proportions respectives de chacune des phases
Table 4 : XEC simulated in Fe_α – copper two-phases alloy, as a function of the proportion of each phase

Fraction volumique de la phase diffractant		100%	75%	50%	25%	0%
Ferrite	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	7.31	7.41	7.53	7.65	7.77
	S [10^{-6}/MPa]	2.29	2.44	2.61	2.77	2.95
Cuivre	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	13.71	13.43	13.17	12.92	12.70
	S [10^{-6}/MPa]	5.46	5.05	4.66	4.30	3.96

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

Tableau 5 : CER déterminées dans un biphasé aluminium - carbone diamant, en fonction des proportions respectives de chacune des phases
Table 5 : XEC simulated in the case of aluminum – diamond carbon two-phases alloy , as a function of the proportion of each phase

Fraction volumique de la phase diffractant		100%	75%	50%	25%	0%
Aluminium	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	19.99	19.70	19.38	19.18	19.10
	S [10^{-6}/MPa]	1.71	1.23	0.70	0.37	0.23
Carbone diamant	1/2 S2(h00) [10^{-6}/MPa]	1.29	1.29	1.30	1.30	1.30
	S [10^{-6}/MPa]	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01

3 - Existence d'interactions entre les phases

Ces résultats montrent que le modèle permet de rendre compte des effets exercés par l'état de biphasage d'un système sur les CER d'une phase donnée. Du point de vue physique, l'inégalité entre les CER d'une phase α pure et les CER de la phase α appartenant à un matériau biphasé $\alpha + \beta$ s'explique par l'existence d'interactions élastiques entre le volume diffractant de la phase α et l'ensemble de la phase β. Ce phénomène peut être décrit par les figures 1a et 1b. Pour que les CER de la phase α soient identiques dans la phase pure et dans le biphasé, il faudrait que le volume diffractant de α soit uniquement connexe avec des grains de phase α, comme sur la figure 1a. Cependant, dans la réalité, les grains du volume diffractant de α peuvent avoir pour premiers voisins des grains de β, comme indiqué sur la figure 1b. La présence de ces grains β modifie en toute logique le comportement élastique du volume diffractant de α.
Dans le cas du CMM aluminium - SiC β, les CER calculées dépendent fortement de la fraction volumique de chacune des phases. On observe un résultat identique dans le biphasé ferrite - cuivre. Cette propriété s'explique par les fortes hétérogénéités de comportement mécaniques existant, d'une part, entre l'aluminium et le carbure de silicium, et, d'autre part, entre la ferrite et le cuivre. Inversement, dans le cas de l'acier austéno-ferritique, les faibles différences de comportement mécanique élastique des deux phases sont à l'origine de la faible dépendance de leur CER vis à vis de la composition de l'acier. De façon générale, pour un biphasé ($\alpha + \beta$), on peut démontrer que les CER de la phase α s'écartent d'autant plus de la valeur obtenue pour la phase α pure, lorsque l'état de biphasage du système augmente. C'est à dire, lorsque la fraction volumique de la phase α s'éloigne de 1, et lorsque la phase β est caractérisée par un comportement mécanique élastique sensiblement différent de celui de la phase α.
Les résultats obtenus pour le biphasé aluminium - diamant suivent cette règle, du moins pour ce qui concerne les CER de l'aluminium. Le comportement du diamant semble par contre s'écarter de ce modèle. Ses CER restent en effet constantes quelle que soit la composition du biphasé, et ce, en dépit des considérables différences de comportement élastique existant entre l'aluminium et le diamant. Cependant, on peut montrer que ce phénomène est l'expression d'une propriété propre au diamant et que l'on ne retrouve dans aucune des autres phases étudiées (aluminium, cuivre, ferrite, austénite et SiC). L'expression de S a été donnée par (3). On peut montrer que le coefficient A_{RX} d'anisotropie aux rayons X de la phase α est égal à 1 lorsque l'équation (4) est vérifiée :

$$c_{11}^{\alpha} - c_{12}^{\alpha} - 2c_{44}^{\alpha} = 0 \qquad (4)$$

Ceci est caractéristique d'un monocristal isotrope, ce qui est le cas du diamant (A=1.01). Dans ce cas, le coefficient S tend vers 0. Il s'ensuit que les CER d'une telle phase sont presque constantes, pour une fraction volumique donnée. Mais, on remarque également que l'effet du biphasage s'annule pour une valeur $\Gamma = \Gamma_0$ proche de 0,2. En ce point, on a évidemment égalité entre les CER du monophasé et du biphasé, pour la phase α.

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

Or, l'expression (1) de la CER peut encore s'écrire :

$$\frac{1}{2}S_2(\Gamma) = \frac{1}{2}S_2(\Gamma_0) + [3\Gamma_0 - 3\Gamma]S \qquad (5)$$

Dans le cas d'une phase ayant un monocristal presque isotrope du point de vue élastique, cette expression se simplifie pour donner :

$$\frac{1}{2}S_2(\Gamma) = \frac{1}{2}S_2(\Gamma_0) + \varepsilon \qquad (6)$$

avec $\varepsilon \to 0$. Les CER d'une telle phase sont donc, en première approximation, indépendantes de l'état du biphasage du matériau. Ceci explique le comportement particulier du diamant, mais on peut s'attendre à observer un phénomène identique pour le tungstène (A = 0.98), et dans une moindre mesure pour le TiC (A=0.90) et le molybdène (A = 0.91).

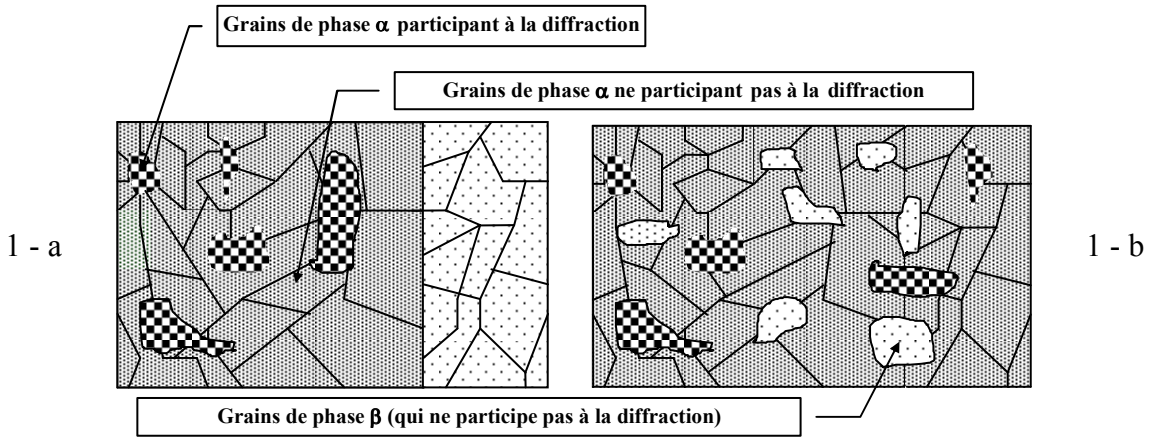

*Figure **1 – a** volume diffractant uniquement connexe avec des grains de la même phase (égalité des CER du monophasé et du biphasé) **- b** volume diffractant de α en interaction avec des grains de β premiers voisins.*
*Figure **1 – a** Diffracting volume constituted by α grains only connected to other α grains. (Case of equality of the XEC in the single phase and two phases material). – **b** Diffracting volume constituted of α grains interacting with α and β first neighbours grains.*

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

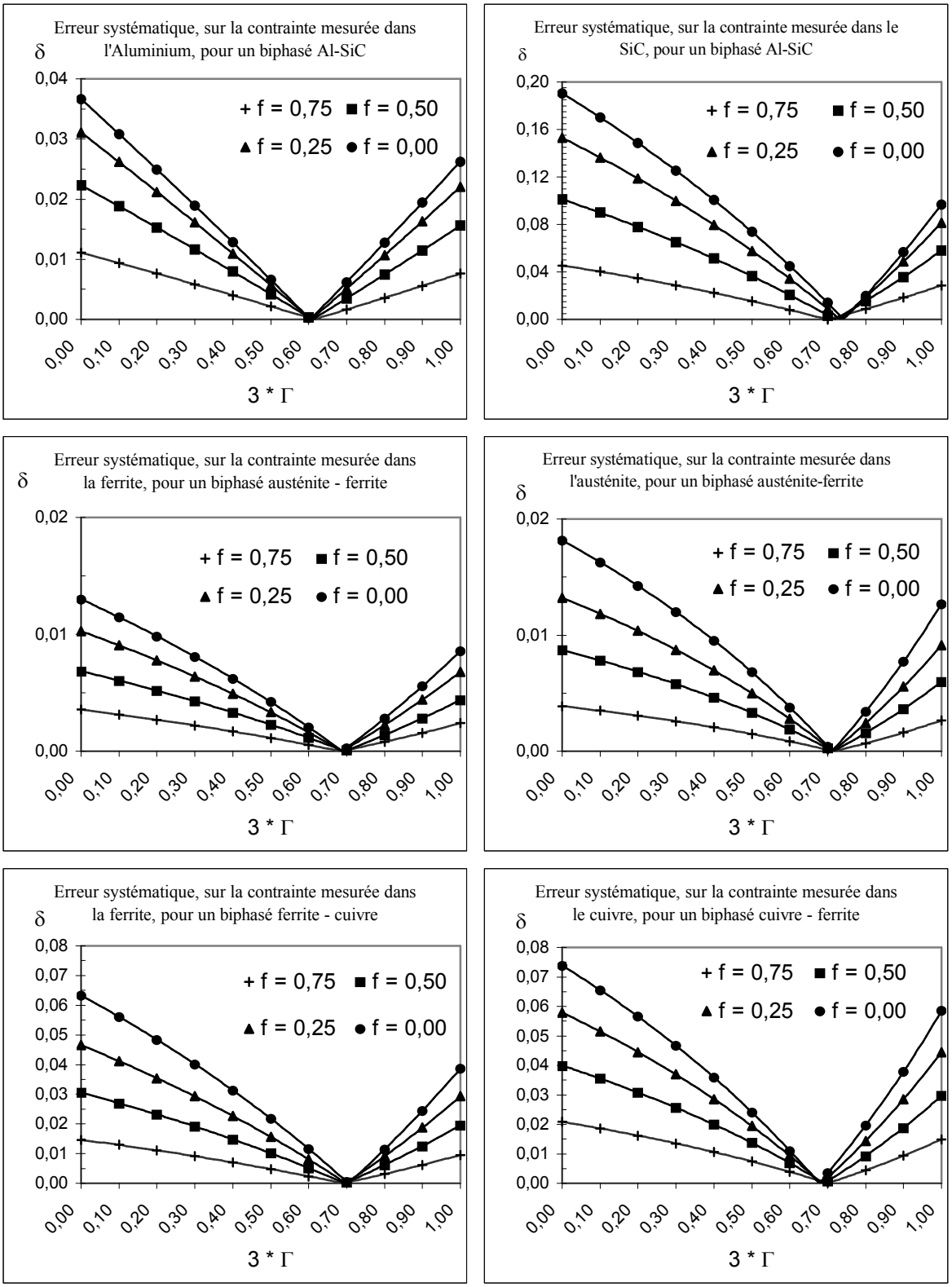

Figure 2 : Tracé de l'erreur systématique δ, due au biphasage, sur la contrainte mesurée dans différentes phases de matériaux biphasés. f indique la fraction volumique de la phase analysée.

Figure 2 : Calculated relative systematic error δ, due to multiphase effects, on the stresses determined in several cubic structure phases of two-phases polycrystals. f denotes the volume fraction of the analysed phase.

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

4 - Conséquences des effets du biphasage sur la méthode de détermination des contraintes par DRX

L'hypothèse usuelle conduit à introduire dans la relation en « $\sin^2\psi$ » les valeurs de CER des phases pures, pour exploiter les résultats de mesures effectuées dans des biphasés. Les résultats donnés précédemment montrent que cette approche ne donne qu'une approximation du comportement mécanique effectif de l'échantillon analysé. En conséquence, l'usage de cette hypothèse génère une erreur systématique δ sur la détermination des contraintes. Pour une famille de plans diffractant {hkl} donnée, dans le cas d'un matériau contenant une fraction volumique f de la phase analysée, cette erreur systématique peut être exprimée comme suit :

$$\delta = \frac{\frac{1}{2}S_2(\Gamma, f) - \frac{1}{2}S_2(\Gamma, f = 1)}{\frac{1}{2}S_2(\Gamma, f = 1)} \qquad (8)$$

$\delta(f=0)$ correspond au cas limite de l'inclusion d'Eshelby, qui fixe la valeur maximale de l'écart à laquelle on peut s'attendre.

L'application de cette relation aux biphasés ferrite – cuivre, aluminium – SiC et austénite – ferrite a conduit aux tracés des courbes reproduites sur la figure 2. Les incertitudes expérimentales sur des contraintes résiduelles déterminées par la DRX sont généralement comprises entre 5 et 15%. L'erreur systématique δ due à l'emploi de l'hypothèse usuelle reste la plupart du temps largement inférieure à 5%. Cependant, cette approche peut conduire à des écarts importants entre les états de contraintes déterminés et la contrainte réelle existant dans le matériau, en particulier, lorsque l'état de biphasage est très prononcé (cf cas de Al + SiC).

5 - Conclusion

La valeur des CER joue un rôle très important dans les méthodes de détermination des contraintes résiduelles par la diffraction des rayons X. Un modèle autocohérent élastique basé sur le formalisme de Kröner et Eshelby a été développé afin de simuler le comportement mécanique du volume diffractant du matériau. Ceci a permis de mettre en évidence l'influence de l'état de biphasage sur les valeurs de CER. On a pu montrer que cette influence pouvait être considérée comme une source d'erreur supplémentaire du point de vue de la détermination des contraintes. La prise en compte des effets dus au biphasage participe donc à la démarche qui tend à identifier les autres sources d'incertitudes affectant les résultats des contraintes déterminées par les techniques de DRX.

Références bibliographiques

[1] Noyan I. Cohen J., Residual Stress Measurement by Diffraction and Interpretation, Springer Verlag, New York, 1987

[2] W. Voigt, Lehrbuch der Kristallphysik, Teubner, Leipzig/Berlin, 1928

[3] W. Voigt, Wied. An. 38, 1889, pp 573-587

[4] A. Reuss, Z. Angw. Math. Mech. 9, 1929, pp 49-58

[5] E. Kröner, Z. Physik. 151, 1958, pp 504-518

[6] E. Kröner, J. Mech. Phys. Solids 15, 1967, pp 319-329

[7] R. Hill, Proc. Phys. Soc. A65, 1952, pp 349-354

[8] J. D. Eshelby, Proc. of the royal society London, 241 A, 1957, pp376-379

[9] P. Hadmar et al., Proc. ECRS 4, Cluny, 1996, pp 1043-1051

[10] K. Van Acker, P. Van Houtte, Proc. ECRS 4, Cluny, 1996, pp 911-920

[11] M. Ceretti, C. Braham, Colloque de métallurgie, Saclay, 1994, pp 221-232

[12] R. Morris, Int. J. Eng. Sci, 8, 1970, p49

[13] W. F. Hosford, The Mechanics of Crystals and Textured Polycrystals, Oxford Science Publications, 1993, p16

Fréour, S., Gloaguen, D., François, M., Guillén, R. (2003). Two-phases effects on the X-Ray Elasticity Constants required to XRD stresses analysis, *Revue de Métallurgie*, **12** (december), 1185-1191.

[14] D.H. Chung, W.R. Buessem, The elastic anisotropy of crystals, J. Appl. Phys, 39, 1967, pp 217-245

[15] F. Bollenrath, V. Hauk, Z. Metallkde. 58, 1967, pp76-82