



HAL
open science

Evolution de la porosité interfaciale et écaillage induit par oxydation dans un système barrière thermique

Christophe Courcier, Vincent Maurel, Luc Rémy, A. Phelippeau

► **To cite this version:**

Christophe Courcier, Vincent Maurel, Luc Rémy, A. Phelippeau. Evolution de la porosité interfaciale et écaillage induit par oxydation dans un système barrière thermique. Matériaux 2006, 2006, Dijon, France. 8 p. hal-00144445

HAL Id: hal-00144445

<https://hal.science/hal-00144445>

Submitted on 3 May 2007

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Évolution de la porosité interfaciale et écaillage induit par oxydation dans un système barrière thermique.

C. Courcier^{1,2}, V. Maurel¹, L. Rémy¹, A. Phelippeau²

¹ Centre des Matériaux Pierre Marie Fourt - Mines, ParisTech, UMR CNRS 7633, Evry
² Snecma – Site de Villaroche, rond point René Ravaud, Réau, 77550 Moissy Cramayel
E-mail : christophe.courcier@ensmp.fr

RESUME :

L'exposé présente les premiers développements d'un modèle de prévision de la durée de vie (DDV) d'un système « barrière thermique », sous chargement thermique isotherme. Une base de données pertinente pour la mise au point de ce modèle a été constituée en réalisant des essais d'oxydation de différentes durées. La résistance à l'écaillage a été notamment étudiée par des essais de compression. Ceci a permis la quantification du dommage interfacial qui consiste en la germination, la croissance et la coalescence de cavités entre la sous-couche et l'oxyde. Un modèle traduisant l'évolution de ces cavités a été développé : nous montrons qu'il permet de retrouver les tendances observées expérimentalement et notamment l'indépendance de la déformation à l'écaillage en fonction de la taille des défauts vis-à-vis de la géométrie. À terme, on complètera ce modèle en introduisant l'évolution des contraintes dans le système barrière thermique et en simulant le flambage des décohésions interfaciales.

MOTS-CLES : *barrière thermique, cavité interfaciale, oxydation isotherme, écaillage.*

TEXTE ETENDU :

1. Introduction

Afin de pouvoir améliorer les rendements moteurs, les gaz brûlés en entrée de turbine atteignent des températures de l'ordre de 1600°C (corps haute pression moderne) ce qui est bien au-delà des températures limites d'utilisation des superalliages. Après avoir développé des techniques de refroidissement des pièces (aubes et distributeurs) en parallèle de l'évolution des superalliages développés dont les gains s'amenuisent, les motoristes aéronautiques ont adopté la technologie, devenue aujourd'hui stratégique et incontournable, des barrières thermiques. Ces barrières consistent en un revêtement de faible conductivité (céramique) sur une pièce métallique refroidie. Le revêtement a pour effet la diminution de la température du métal en régime stationnaire et l'écrêtage des transitoires thermiques.

Une barrière thermique consiste en un système multicouche :

- Une couche externe constituée de céramique, dont la faible conductivité thermique permet l'obtention d'un gradient thermique important.
- Une sous-couche métallique qui, déposée sur le superalliage, permet d'améliorer la résistance à l'oxydation du système ainsi que l'adhérence de la céramique.
- Une couche intermédiaire d'oxyde qui se forme sur la sous-couche métallique et dont l'épaisseur évolue de manière continue à haute température.

Le problème majeur en fonctionnement consiste en l'écaillage, plus ou moins étendu, de la barrière thermique avec l'accumulation des cycles thermiques ou thermomécaniques. Cet écaillage entraîne la formation d'un point chaud sur la pièce, menant à sa ruine rapide.

La rupture des barrières thermiques a été étudiée de manière très importante dans la littérature. Le procédé de rupture varie suivant le type de système (procédé de dépôt, composition des matériaux employés) et le type de chargement employé (oxydation isotherme, cyclique et sollicitation thermomécanique). Ainsi, il a été constaté que l'endommagement du système sous chargement thermique cyclique est principalement dû à l'accentuation de la rugosité interfaciale (phénomène dit de « rumpling ») qui provoque le soulèvement de la couche de céramique. Dans le cas isotherme, l'endommagement est dû aux contraintes induites par la croissance de la couche d'oxyde qui conduit au délaminage, puis au flambage et à l'écaillage de la barrière

thermique non adhérente. Dans certains systèmes, la croissance de la couche d'oxyde s'accompagne du développement d'une porosité à l'interface avec la sous-couche [1,2].

L'objectif de notre étude est la modélisation de la durée de vie à l'écaillage des barrières thermiques pour aubes de turbines aéronautiques sous sollicitation isotherme. Bien que l'essai le plus représentatif du fonctionnement réel soit l'essai de fatigue anisotherme (combinaison de sollicitations thermiques et mécaniques) [1,2], il est nécessaire d'étudier des essais pour lesquels la sollicitation est découplée afin de mieux pouvoir appréhender les phénomènes complexes se produisant en fatigue thermomécanique.

L'endommagement considéré a été principalement étudié dans le cadre de l'oxydation des alliages métalliques [2,3] (la littérature concernant les barrières thermiques y fait peu allusion). Sur ce type de système, il a été observé que la couche d'oxyde formé sur l'alliage a tendance à se rompre au niveau des cavités interfaciales. Ceci se traduit généralement par des micro-écaillages. La présence de la céramique au-dessus de l'oxyde permet d'empêcher ces micro-écaillages : les cavités vont donc grandir, coalescer et atteindre des tailles de l'ordre de quelques centaines de micromètres carrés : la rupture de l'alumine devient alors macroscopique. Pour étudier et modéliser la rupture du système sous chargement isotherme, nous nous appuyons sur les campagnes d'essais d'oxydation isotherme menées lors des thèses de C. Guerre et I. Rouzou [4,5]. Un module de calcul est développé à partir de ces résultats expérimentaux : il permet la modélisation de la germination et de l'évolution des cavités interfaciales (rayon moyen des défauts, taux de porosité de l'interface).

2. Description du système et détails expérimentaux

Le superalliage est un superalliage monocristallin base nickel. Ce superalliage est constitué d'une matrice austénitique γ dans laquelle a précipité une phase durcissante γ' $\text{Ni}_3(\text{Al}, \text{Ti}, \text{Ta})$ cohérente avec la matrice. Cette structure biphasée γ/γ' permet une bonne stabilité à haute température et en fluage. Les précipités γ' se présentent sous une forme cuboïde.

Le superalliage est recouvert d'une sous-couche d'accrochage en aluminiure de nickel modifié platine (Ni, Al, Pt). Cette sous-couche joue un rôle de protection du superalliage contre l'oxydation par formation d'une couche d'alumine. Elle permet également l'accommodation des différences de coefficients de dilatation thermique entre les couches du système. Elle peut être divisée en une zone interne et une zone externe, la frontière étant marquée par un liseré d'alumine issu du sablage initial. La couche externe (supérieure) est constituée d'un $(\text{Ni}, \text{Pt})\text{Al}$ de structure β cubique centrée ; la zone interne (inférieure) est caractérisée par la présence de précipités γ' - Ni_3Al . L'enrichissement au platine améliore le comportement en oxydation en facilitant la formation d'alumine de type α .

La céramique étudiée est une zircone partiellement stabilisée (PSZ) par 8% d' Y_2O_3 (yttrine), constituée d'une matrice cubique et de fins précipités de phase quadratique élaborés par Electron Beam Physical Deposition (EBPVD) au Ceramic Coating Center (commun à Snecma et MTU). Ce type de dépôt entraîne la formation d'une structure colonnaire offrant une grande adaptation aux déformations imposées par les couches sous-jacentes.

Une base d'essais d'oxydation isotherme sur ce système a déjà été réalisée par C. Guerre et I. Rouzou [4,5]. Le traitement thermique est réalisé dans un four à résistances. Les éprouvettes sont introduites lorsque la température du four est stabilisée à la température maximale du superalliage constituant les aubes de turbine en fonctionnement. Le refroidissement est effectué four coupé. Le suivi de la température se fait par thermocouples. Pour les oxydations jusqu'à écaillage, le contrôle du système se fait visuellement.

Une fois ces éprouvettes vieillies thermiquement, la décohésion interfaciale est quantifiée par un essai d'écaillage effectué à température ambiante par compression par palier de 0.1% de déformation. Ces essais permettent de disposer de deux types d'informations :

- Une déformation à l'écaillage qui est une « mesure » de l'endommagement interfacial.
- Un faciès de rupture dont l'observation au microscope électronique à balayage (MEB) fournit des données statistiques sur l'évolution de l'endommagement avec le temps passé à haute température (taille moyenne des défauts, densité de défauts, fraction surfacique, localisation, etc...).

3. Résultats expérimentaux

C. Guerre et I. Rouzou [4,5] ont testé l'écaillage de la barrière thermique pour différentes durées de vieillissement. Au cours de l'oxydation isotherme, l'interface (entre l'oxyde et la sous-couche métallique ou

entre l'oxyde et la céramique) initialement adhérente devient une alternance de zones de contact et de zones de non-contact.

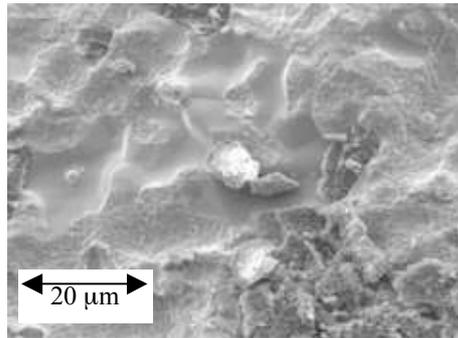


fig. 1 : observation au MEB de la sous-couche après écaillage (oxydation isotherme 64h, d'après [4])

Cette alternance s'explique par l'apparition de pores de géométrie et de tailles variées suivant leur localisation (les pores de grandes tailles sont généralement localisés dans les zones de fortes convolutions). On peut cependant noter que les pores à l'interface céramique – alumine sont rapidement comblés par la croissance de grains équiaxes d'oxyde.

L'interface alumine – sous-couche présente deux faciès : des zones marquées par l'empreinte des grains et des zones non marquées correspondant à des pores interfaciaux (fig. 1). Le fond de ces pores est marqué par des figures cristallographiques dues à l'évaporation de l'aluminium (zones poreuses).

Il a été constaté que l'écaillage pouvait intervenir à différents moments de l'essai : lors du temps passé dans le four, lors du refroidissement ou même lors de l'ajout d'une contrainte macroscopique de compression. Ces trois cas traduisent des stades plus ou moins avancés de l'endommagement de l'interface oxyde – sous-couche. Les étapes successives de cet endommagement sont la germination de décohésions, leur croissance due à des facteurs mécaniques (contraintes de croissance de l'alumine et déformation plastique de la sous-couche par relaxation des contraintes à haute température) et/ou diffusives siégeant à l'interface, leur coalescence, leur percolation et enfin le flambage des couches supérieures conduisant à l'écaillage de la barrière thermique.

L'observation des faciès à une échelle supérieure (dite mésoscopique) permet d'évaluer également l'avancement de l'endommagement : plus le temps d'oxydation est important, plus le délaminage est localisé au niveau de l'interface oxyde/sous-couche (fig. 2).

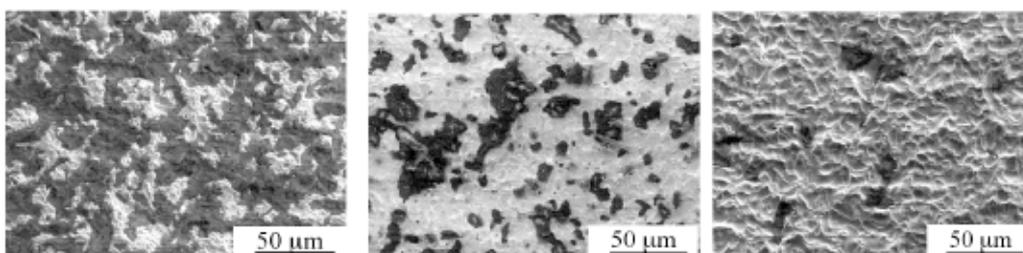


Fig. 2 : faciès de rupture pour 8, 32 et 64h d'oxydation isotherme d'après [4]

Afin de trouver un moyen de quantifier cette évolution, C. Guerre et I. Rouzou [4,5] ont effectué des analyses statistiques des faciès de rupture et ont notamment étudié l'évolution de la déformation à l'écaillage, du rayon moyen des pores et de la fraction surfacique de pores (fig. 3).

Toutes ces données confirment un affaiblissement progressif de l'interface oxyde/sous-couche avec le temps passé à haute température par germination et évolution des cavités interfaciales. L'apparition du phénomène de coalescence semble coïncider avec une oxydation d'une durée de 8/10 h. Le nombre de pores diminue à partir de ce moment, mais la croissance des pores coalescés permet l'augmentation rapide de la fraction surfacique. On constate également une croissance plus rapide du rayon moyen des défauts interfaciaux. Cette analyse est corroborée par l'évolution de la déformation de compression à l'écaillage.

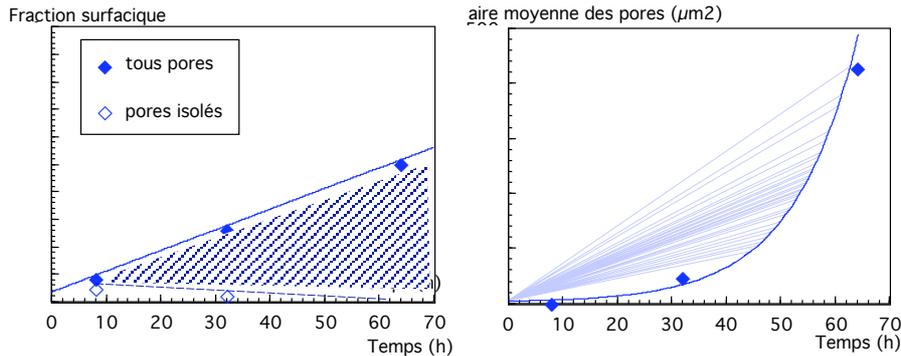


Fig. 3 : Evolution de la fraction surfacique et du rayon moyen des pores en fonction du temps d'oxydation isotherme d'après [4]

4. Modélisation de l'écaillage

Nous proposons une modélisation de l'écaillage par germination, croissance, coalescence puis flambage de cavités à l'interface oxyde/sous-couche. Ce type de modèle est souvent utilisé dans l'étude de la rupture ductile [6,7].

a. Cadre du modèle :

Le modèle de cavitation développé est basé sur une approche à deux dimensions. Il prend en compte la germination des cavités ainsi que leur croissance et leur coalescence à partir de données phénoménologiques. On considère une surface carrée ou rectangulaire, représentative de la fenêtre d'observation expérimentale.

À cette surface est associée une distance inter pore grâce à laquelle on définit un réseau. Ce réseau correspond à l'ensemble de sites de germination possibles. La distance inter-pores peut être fixe ou variable en introduisant une perturbation. On définit également un pas de temps auquel on associe un incrément de déformation fixe.

b. Germination :

La germination des cavités est supposée continue. En notant N le nombre de cavités germés par unité de temps, le nombre de cavités créé à chaque incrément de temps est :

$$C_t = N\Delta t \quad (1)$$

On considère que sur la trame des sites possibles de germination, un certain nombre ne verra pas l'apparition d'une cavité à haute température, d'où l'introduction d'un pourcentage de germes viables p (0<p<1).

$$Nb_{sites\ viables} = pNb_{sites\ germes} \quad (2)$$

c. Croissance :

La vitesse moyenne de croissance des pores avant coalescence est évaluée à partir de la base expérimentale. En considérant les pores comme des disques de rayon initial r_0 , on obtient :

$$A(t) = \alpha t \Rightarrow r(t) = \sqrt{\frac{\alpha t}{2\pi}} \quad (3)$$

où A est l'aire moyenne des pores, r(t) le rayon moyen, t le temps en heure, α une constante et $r_0 = 0,5 \mu\text{m}$.

Concernant les pores coalescés, nous avons très peu d'informations sur leur vitesse de croissance. Nous considérons donc la loi (3), en accentuant la valeur de α par un facteur multiplicatif β (influence de la taille de pores sur la vitesse de croissance possible pour des tailles importantes).

d. Coalescence :

La coalescence a lieu lorsque le ligament de matière entre deux cavités (ou plusieurs) est réduit à une valeur critique. Lorsque le cas se présente, la taille de la cavité coalescée augmente de manière abrupte par conservation de surface :

$$\pi r_c^2 = \pi r_i^2 + \pi r_j^2 \quad (4)$$

avec r_c le rayon du pore obtenu par coalescence des pores i et j . Le centre de la nouvelle cavité est obtenu en calculant le barycentre de l'ensemble des cavités concernées par la coalescence.

e. Algorithme :

Les équations ci-dessus entrent dans le développement d'un programme de calcul capable de prédire l'évolution de paramètres tels que le rayon moyen ou la fraction surfacique. La simulation s'effectue en plusieurs temps :

- On considère une surface carrée
- On impose un incrément de temps : un nombre C_i de cavités apparaissent, leur positionnement est choisi aléatoirement.
- Les rayons des pores germés au pas de temps précédent croissent suivant la loi (3).
- La distance entre chaque pore est calculée à partir de leur rayon et des coordonnées de leur centre : si cette distance est inférieure à $0,1 \mu\text{m}$, les pores coalescent. Les deux pores disparaissent et laissent la place en leur barycentre à un pore unique dont le rayon vérifie la loi (4).
- On incrémente le temps, et on répète les opérations précédentes.

Les paramètres d'entrée sont la vitesse de germination, la vitesse de croissance des pores coalescés et des pores indépendants V_c et V_i , la distance inter pores, la taille de la cellule, la distance critique à coalescence $d_{\text{coalescence}}$ et le pourcentage de germes effectifs.

f. Résultats :

Les figures 4-11 présentent les évolutions du rayon moyen et de la fraction surfacique des cavités en fonction du temps d'oxydation isotherme. Une étude paramétrique est effectuée :

- Série 1 : Une vitesse de germination continue, un taux de germes viables de 70%, une vitesse de croissance d'aire de 5 fois plus importante pour les pores coalescés, une distance à coalescence de $0,1 \mu\text{m}$, une taille de cellule de $60 \mu\text{m}$.
- Série 2 : Idem que série 1 + vitesses de croissance d'aire de pore identiques pour tout type de pores
- Série 3 : Idem que série 1 + germination instantanée
- Série 4 : Idem que série 1 + taux de germes viables de 35%
- Série 5 : Idem que série 1 + $d_{\text{coalescence}}$ de $0,3 \mu\text{m}$
- Série 6 : Idem que série 1 + taille de cellule de $120 \mu\text{m}$.

Pour chaque série et chaque distance inter-pores ont été effectués 12 calculs. Tous les résultats sont présentés en unités arbitraires.

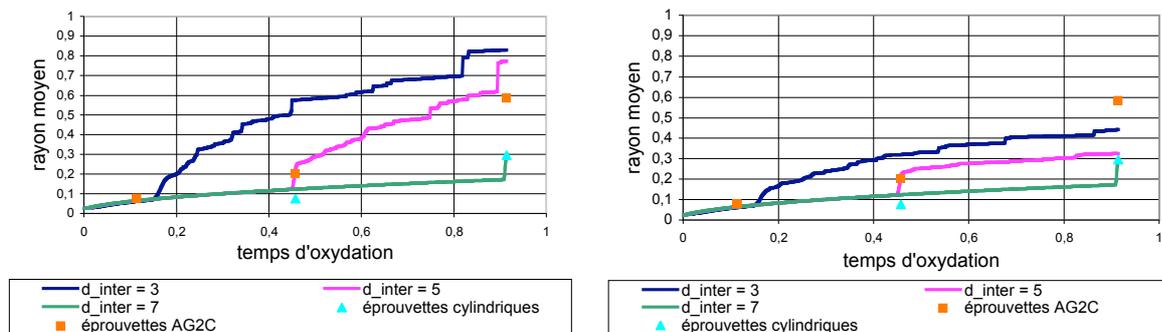


fig. 4 : évolution du rayon moyen – comparaison entre $V_c/V_i = 5$ (série 1) et $V_c/V_i = 1$ (série 2)

La comparaison entre la série 1 et la série 2 montre que la vitesse de croissance des pores coalescés joue un rôle important sur l'évolution du rayon moyen. Dans le cas de la série 1, l'accélération de cette vitesse permet une relative adéquation entre les observations sur les éprouvettes AG2C (géométrie diabolo) et les résultats obtenus pour une distance inter-pores de 5 μm . Dans le cas de la série 2, cette adéquation s'effectue avec les observations effectuées sur éprouvettes cylindriques.

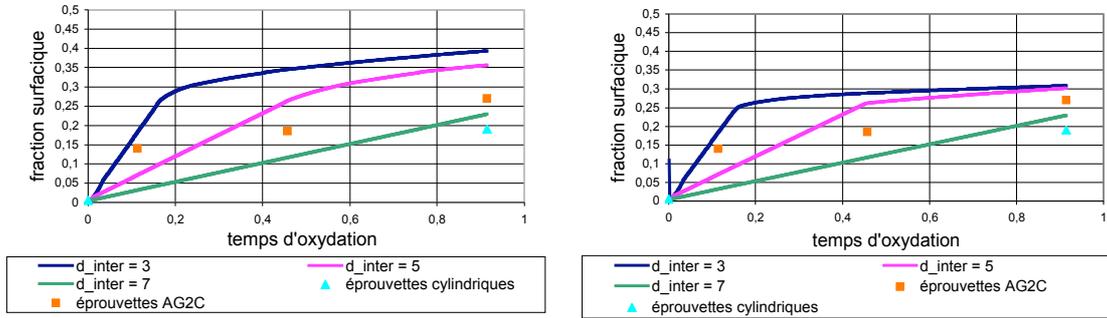


fig. 5 : évolution de la fraction surfacique – comparaison entre $V_c / V_i = 5$ (série 1) et $V_c / V_i = 1$ (série 2)

On constate que le module de calcul tend à surestimer la fraction surfacique observée. Ce problème semble lié à la densité de pores présents à l'interface. Les résultats en germination instantanée (uniquement croissance et coalescence) confirment cette tendance (fig. 6).

Remarque : les tailles de cellule utilisées pour le calcul étant petites par rapport aux tailles observées sur les surfaces écaillées, nos comparaisons ne sont jamais strictement valides ni pour les éprouvettes AG2C, ni pour les éprouvettes cylindriques.

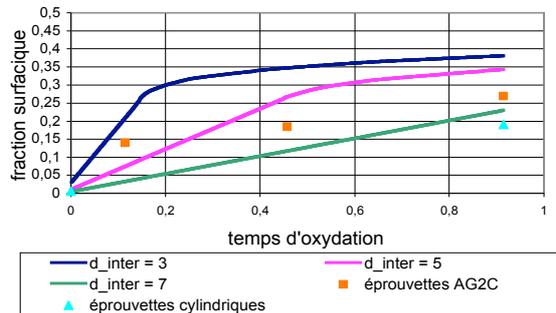


fig. 6 : évolution de la fraction surfacique dans le cas de la germination instantanée

En réduisant la fraction surfacique de germes viables, on réduit considérablement la fraction de pores et on approche les observations sur éprouvettes (fig. 7). Cependant, la coalescence intervient beaucoup trop tardivement (fig. 7) : la distance moyenne inter-pores est très importante. Augmenter la valeur de la distance critique à coalescence ne permet pas d'accélérer l'occurrence de la première coalescence.

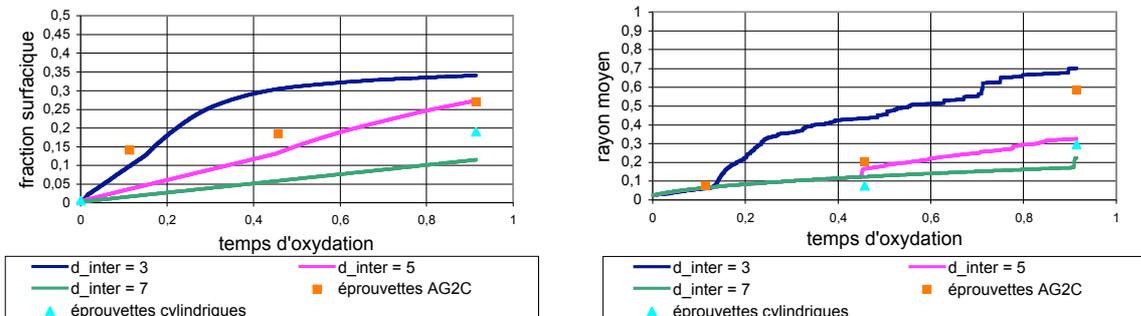


fig. 7 : évolution de la fraction surfacique et du rayon moyen pour la série 4.

Il faut donc réduire la densité de pores tout en maintenant une distance moyenne entre chacun d'eux suffisamment faible pour ne pas déplacer l'apparition de la coalescence vers des temps d'oxydation trop

élevés. Le problème se situe donc très certainement dans la notion de réseau de germination introduite précédemment. Le réseau régulier à motif carré ou rectangulaire utilisé est une schématisation excessive de la répartition de germes réelle.

Il est possible que le motif du réseau de germination corresponde aux joints de grains affleurant à la surface de la sous-couche représentés par un motif hexagonal. En effet il a été observé que de nombreux pores apparaissent aux niveaux de points triples et de joints de grains (fig. 8). Si ceci se vérifie, on peut considérer un réseau de motifs hexagonaux sur lequel :

- Les cavités apparaîtraient dans un premier temps au niveau des points triples,
- Les cavités apparaîtraient dans un second temps sur les joints de grains.
- La croissance des cavités au x points triples serait plus rapide que celle au niveau des joints de grains (diffusion plus importante, puits de lacunes).

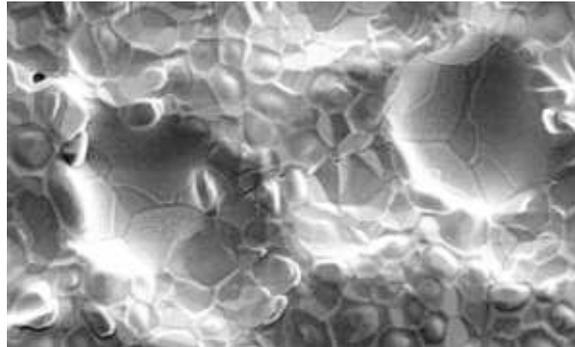


Fig. 8 : cavités au niveau des points triples

L'étude de l'influence de la taille de la cellule de calcul montre l'apparition d'un effet d'échelle : plus la surface est importante, plus la taille moyenne des cavités est importante. On remarque également que la fraction surfacique reste malgré tout globalement identique. Cet effet d'échelle a été observé expérimentalement : plus la surface d'éprouvette est importante, plus la durée de vie est faible en oxydation isotherme, ce qui peut s'expliquer par un plus grand nombre de défauts de très grandes tailles.

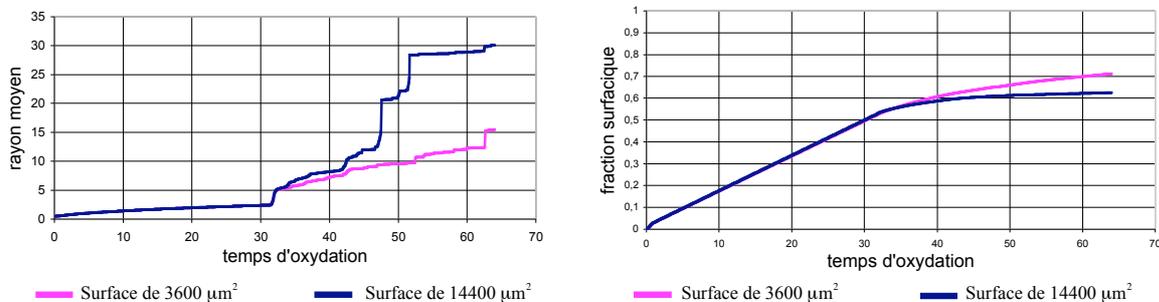


Fig. 9 : influence de la taille de cellule – mise en évidence d'un effet d'échelle

Expérimentalement il a été constaté que la déformation à l'écaillage décroît avec le temps d'oxydation à haute température mais elle dépend aussi de la géométrie de l'éprouvette testée : ainsi l'écaillage est obtenu plus rapidement pour une éprouvette cylindrique dont la surface utile est plus grande d'un ordre de grandeur que pour une éprouvette AG2C (Fig. 10). On peut estimer que l'endommagement interfacial et donc la taille moyenne des défauts interfaciaux est plus importante pour les éprouvettes de type cylindrique.

Il est alors intéressant de tracer l'évolution de cette déformation à l'écaillage en fonction du rayon moyen calculée à différents temps d'oxydation pour les 2 géométrie d'éprouvette, dont les surfaces utiles présentent un rapport de l'ordre de 10 (Fig. 10). On constate que la déformation à écaillage décroît linéairement avec l'augmentation de taille moyenne des pores, indépendamment de la géométrie de l'éprouvette. Ce résultat montre l'intérêt du modèle développé pour traduire la sensibilité de la résistance à l'écaillage en fonction de la taille de la surface sollicitée de façon homogène.

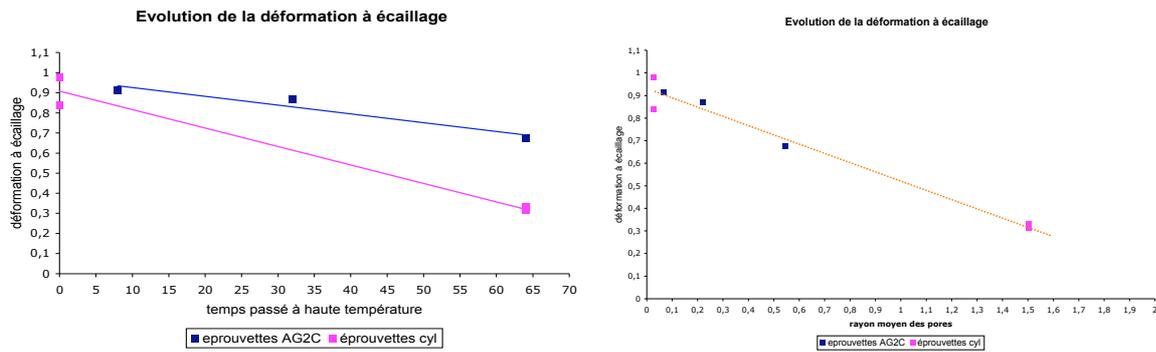


Fig. 10 : évolution de la déformation à l'écaillage en fonction du temps passé à haute température et du rayon moyen de défauts pour différentes géométrie d'éprouvettes

5. Conclusion

Un module de calcul de germination, croissance et coalescence de cavités interfaciales a été développé afin de modéliser le vieillissement et l'affaiblissement de l'interface oxyde/sous-couche sous des chargements de type oxydation isotherme. Il permet de retrouver des tendances observées à la suite d'essais d'écaillage mené par C. Guerre et I. Rouzou : évolution de la fraction de pores, du rayon moyen, effet d'échelle.

De plus, la courbe $e_c = f(r_{\text{moyen}})$ démontre la capacité du modèle à décrire l'évolution de l'endommagement en oxydation isotherme.

L'étude paramétrique a mis en évidence l'impact de la contrainte sur la vitesse de croissance des cavités, la nécessité de modifier la gestion de la germination (passage d'un réseau cubique à un réseau hexagonal) et celle d'effectuer de nouveaux essais afin de compléter la base de données expérimentales à disposition.

La prochaine étape est l'introduction du calcul mécanique : ce calcul, effectué à partir d'un calcul EF mené sur le superalliage seul, détermine l'évolution des contraintes et déformations en chaque couche du système barrière thermique, et il fournira les données d'entrée pour le module de calcul de pores. L'implantation d'équations de flambage permettra de tester l'efficacité de ce modèle vis-à-vis des résultats d'essais d'écaillage.

Références :

- [1] A. Bickard, « Endommagement sous sollicitations thermiques et mécaniques d'une barrière thermique et d'un aluminure de nickel déposés sur un superalliage monocristallin », thèse de doctorat ENSMP – CDM 1998
- [2] L. Rémy, A. Alam, A. Bickard, « Thermo-mechanical Creep-Fatigue of Coated Systems », Thermomechanical Fatigue Behavior of Materials, 4th volume, ASTM STP 1428, M. A. Mc Gaw, S. Kalluri, J. Bressers and S. D. Peteves, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2003, pp. 98-111.
- [3] D. Poquillon, D. Oquab, B. Viguier, F. Sénocq, D. Monceau, « High-temperature oxidation kinetics of NiAl single crystal and oxide spallation as a function of crystallographic orientation », Materials Science and Engineering A 381, 2004, pages 237–248
- [4] C. Guerre, « Etude des mécanismes d'endommagement d'un système barrière thermique déposé sur un superalliage base nickel », thèse de doctorat ENSMP - CDM 2002
- [5] I. Rouzou, « influence de la rugosité et du soufre sur l'adhérence d'un revêtement barrière thermique EBPVD », thèse de doctorat ENSMP – CDM 2005
- [6] P.D. Nicolaou, S.L. Semiatin, « An analysis of the effect of continuous nucleation and coalescence on cavitation during hot tension testing », Acta Materialia 48, 2000, pages 3441 – 3450.
- [7] A.H. Chokshi, « Cavity nucleation and growth in superplasticity », Materials science and engineering A 410 – 411, 2005, pages 95 – 99