### Quelques mécanismes d'endommagement déterminant la durée de vie des revêtements pour aubes de turbine aéronautique

#### V. Maurel, L. Rémy, A. Koster

Centre Des Materiaux, Mines - ParisTech, CNRS UMR 7633, 91003 EVRY cedex BP 87 Téléphone : 33 1 60 76 30 03 / Télécopie : 33 1 60 76 31 60 Adresses électroniques : vincent.maurel@mines-paristech.fr, luc.remy@mines-paristech.fr, alain.koster@mines-paristech.fr

Mots clés : revêtement barrière thermique, endommagement interfacial, oxydation, fatigue thermo-mécanique, superalliage mono-cristallin

## 1 INTRODUCTION

L'augmentation des températures de combustion nécessite l'utilisation d'aubages monocristallins, refroidis et protégés par des barrières thermiques pour les étages haute pression des turbines aéronautiques. Les revêtements barrières thermiques permettent d'une part de diminuer la température maximale atteinte en surface du substrat au cours des transitoires thermiques, d'environ 200°C pour une centaine de microns d'épaisseur. D'autre part, elles permettent la formation d'un oxyde dense et protecteur limitant la diffusion des éléments d'alliage. On peut limiter ainsi l'endommagement et la perte de propriétés mécaniques du substrat lorsque l'on atteint les domaines de très hautes températures  $(T > 0.8T_f)$ . Un des systèmes barrières thermiques industriel les plus performants consiste en une couche céramique de zircone stabilisée à l'yttium ZrY<sub>2</sub>O<sub>3</sub> déposée par EB-PVD. Un revêtement intermétallique est utilisé pour servir de couche d'accrochage (bond coat, BC) entre la couche céramique et le substrat et également de "réservoir" métallique permettant la formation d'un oxyde de croissance (thermally grown oxide, TGO) dense et protecteur. C'est l'introduction de cette couche réservoir qui permet donc de limiter le phénomène de diffusion entre la surface et le substrat et ainsi de préserver les qualités mécaniques de ce dernier [Evans et al., 2001]. Dans notre cas les couches d'accrochage seront également qualifiées de couches alumino-formeuses dans la mesure où l'oxyde de croissance recherché est de l'alumine dans sa phase  $\alpha$ . Nous nous limiterons ici à l'analyse des couches initialement NiAl ou NiAl-Pt. Les conditions de chargement en service sont de nature thermomécaniques, combinant des phases de maintien à haute température sous forte charge et de cyclage à la fois thermique et mécanique [Bickard, 1998, Rémy et al., 2003]. L'objectif de cette étude est de déterminer des critères d'endommagement fiables quelles que soient les conditions de sollicitations thermomécaniques. Nous nous sommes donc attaché à décrire les différentes phases de chargement vues par des pièces en service et les endommagements associés. En particulier, c'est aux plus hautes températures que se produisent les évolutions microstructurales les plus fortes des couches alors que le retour à basse température provoque les phénomènes de rupture aux interfaces conduisant à la ruine par écaillage de la couche céramique. Ce phénomène est aggravé à basse température par le fort écart dilatométrique existant entre les couches. La morphologie colonnaire de la barrière thermique déposée par EB-PVD permet de réduire cet effet en diminuant la rigidité de la céramique parallèlement au plan de dépôt des couches.



FIGURE 1 – Barrière thermique (YSZ) et sous-couche (Ni,Pt)Al (BC) déposées sur un substrat monocristallin AM1 (sub), système SNECMA (a) état après 200 cycles (b) après 1200 cycles 100-1100°C/5mn à haute température [Maurel et al., 2013a].

## 2 EVOLUTIONS MICROSTRUCTURALES ASSISTÉES PAR L'OXYDATION

Au cours des passages à haute température sous air, l'aluminium contenu dans la sous-couche réagit avec l'oxygène pour former de l'alumine dite de croissance [Evans et al., 2001]. Après un début d'oxydation donnant lieu à la formation de spinelles, instables et peu adhérentes, une couche d'alumine en phase  $\alpha$  se forme à l'interface entre la sous-couche et la base des colonnettes de zircone, figure 1(a). L'appauvrissement de la sous-couche en aluminium conduit à l'apparition de la phase  $\gamma'$ -Ni<sub>3</sub>Al au sein d'une matrice  $\beta$ -NiAl en suivant la réaction :

$$3NiAl + \frac{3}{2}O_2 \rightleftharpoons Ni_3Al + Al_2O_3 \tag{1}$$

Pour des sollicitations de type cyclage thermique, l'épaississement de l'oxyde jusqu'à quelques microns s'accompagne également d'une augmentation de la rugosité, figure 1(b), à l'interface sous-couche/céramique (*rumpling*) [Tolpygo and Clarke, 2000]. Enfin, la nature polycristalline de la sous-couche favorise la croissance de l'oxyde au niveau des joints de grains de la sous-couche, donnant lieu à la formation de bourrelets d'alumine (surépaisseurs locales d'oxyde). Des essais récents réalisés sous atmosphère contrôlée ont permis de mettre en évidence que pour des atmosphères pauvres en oxygène, l'évolution des phases est cohérente avec un essai sous air du laboratoire. En revanche, les oxydes formés sont peu adhérents et correspondent au premiers stades d'oxydation de type spinelle. Une des conséquence directement observable est l'absence du phénomène de rumpling [Sallot, 2012].

Les évolutions microstructurales dans ces revêtements sont donc fonction des conditions thermiques, du chargement mécanique et de la nature des atmosphères en présence. Or, les produits de combustion sont a priori très différents de l'air de laboratoire. En outre, de nombreux auteurs mettent en évidence l'effet néfaste de la pression de vapeur d'eau pouvant conduire à des écaillage rapide pour des états faiblement vieillis [Smialek et al., 2008]. Enfin, les pollutions par les sable ingérés (CMAS) ou les cendres de type volcanique sont catastrophiques pour la tenue des barrières thermiques [Wellman et al., 2010].

## **3** TYPOLOGIE DES ENDOMMAGEMENTS EN OXYDATION SECHE

### 3.1 Porosités interfaciales

Au cours de l'évolution du revêtement, des porosités apparaissent à l'interface sous-couche/ céramique. Elles apparaissent à des échelles fines (inférieures au micron) et croissent avec le nombre de cycles thermo-mécaniques. Certains auteurs lient l'apparition de ces porosités à l'injection de lacunes interfaciales aux cours de la croissance cationique d'oxydes [Rivoaland et al., 2003]. Lorsque l'endommagement est prononcé, la taille des porosités augmente et correspond d'une part à la multifissuration de l'oxyde de croissance et d'autre part à la perte d'adhérence entre l'oxyde et la sous-couche ou entre l'oxyde et le revêtement céramique. En particulier, l'augmentation de rugosité de l'interface céramique/sous-couche, conduit au délaminage de l'interface oxyde/céramique 1(b). Ce type d'endommagement, mettant un jeu l'adhérence de l'oxyde est central dans la compréhension des mécanismes conduisant à la ruine des barrières thermiques.

#### 3.2 Adhérence interfaciale

Si on simplifie l'analyse à un système multicouches barrière thermique/ oxyde/ sous-couche/ substrat (BT/TGO/BC/sub), on met en évidence qu'à basse température, le désaccord dilatométrique entre couches est maximisé. A haute température, la viscosité de la sous-couche est suffisante pour relaxer tout ou partie des contraintes de cisaillement aux interfaces. L'énergie disponible pour rompre les interfaces est essentiellement liée à l'énergie élastique emmagasinée dans la couche céramique et l'oxyde dont le module élastique est très élevé (380GPa à 20°C). Comme l'oxyde croît, son importance dans le bilan énergétique augmente au cours de l'utilisation du revêtement.

#### 3.3 Rôle de la microstructure

Cette étude n'a pas pour objet d'être exhaustive sur l'analyse des évolutions microstructurales dans les revêtements barrières thermiques et leur impact sur l'endommagement, voir la synthèse proposée dans [Evans, 2011]. On retiendra les mécanismes suivant considérés comme critiques :

- croissance de l'oxyde
- augmentation de rugosité interfaciale *rumpling*;
- déformation de croissance de l'oxyde augmente encore l'énergie élastique stockée dans la couche d'oxyde;
- transformation de phases dans la sous-couche et influence de sa microstructure.

Les phases en présence dans la sous-couche métallique s'observent à l'aide de coupes métallurgiques, figure 1, ou par l'analyse en transmission de rayons X par la méthode dite de laminographie [Helfen et al., 2009, Maurel et al., 2012]. Cette méthode est équivalente à la tomographie par rayons X, mais permet d'analyser des échantillons de grandes dimensions et de faible épaisseur (plaques) par une inclinaison spécifique du rayonnement par rapport à l'objet à analyser. On a pu ainsi mettre en évidence le caractère discontinu du changement de phase, sa localisation aux lignes de points triples des grains de sous-couche et la corrélation entre le lieu des endommagements interfaciaux et les joints de grains de la sous-couche [Maurel et al., 2013b].

Un scénario de ruine de la barrière thermique peut être proposé comme i) l'apparition de porosités interfaciales, ii) la propagation de fissures interfaciales conduisant au délaminage des couches et iii) le flambage de la couche céramique et sa rupture.

On peut donc se poser la question du rôle de la microstructure et de son évolution sur les différentes phases d'endommagement. Nous allons dans la suite détailler le rôle de la



FIGURE 2 – (a) vue en coupe du revêtement vieilli obtenue par reconstruction 3D par laminographie RX ( $\gamma'$  en blanc, porosité en sombre); (b) phases  $\gamma'$  en clair observées perpendiculairement au plan des couches, zone endommagées en rouge [Maurel et al., 2013b]

microstructure de la sous-couche et de la morphologie de l'oxyde dans le processus d'écaillage.

# 4 RUINE ET MODÉLISATION ASSOCIÉE

Afin de déterminer l'influence du vieillissement des revêtements sur leur tenue à l'écaillage, nous avons utilisé un essai de compression sur éprouvettes revêtues. Comme dit précédemment, à haute température, la sous-couche devient visqueuse et il est délicat de provoquer l'écaillage [Harvey et al., 2008]. On se limite donc à des essais à température ambiante où le suivi de l'écaillage permet d'estimer la qualité de l'interface et d'analyser les modes de rupture. Nous développons ici l'analyse de l'écaillage de l'oxyde seul (sans barrière thermique) puis de la barrière thermique complète.

4.1 Influence de la microstructure de la sous-couche et de la morphologie de surface dans l'écaillage de l'oxyde

Pour des échantillons dépourvus de barrière thermique, exposés à haute température, nous testons la résistance de l'oxyde de croissance à l'aide d'un essai de compression mécanique réalisé à température ambiante. La mesure des champs de déformation de surface est effectuée à l'aide de la technique de corrélation d'images intégrée dans le logiciel CorreliLMT [Besnard et al., 2006]. On peut ainsi mettre en évidence deux échelles de localisation. En utilisant une résolution de 8 pxl  $\simeq 8\mu$ m, le maximum de déformation de compression correspond aux bourrelets d'alumine qui sont également les lieux d'écaillage aux plus faibles niveaux de déformation, figure 3(a) et (b). A une échelle plus grande, des hétérogénéités de déformation apparaissent pour des zones sensiblement égales à la taille des grains de sous-couche (de l'ordre de  $30\mu$ m), qui sont également les lieux d'écaillage aux plus forts niveaux de déformation, figure 3(c) et (d) [Maurel et al., 2013a].

On propose de modéliser la couche polycristalline NiAl, en utilisant une mesure par EBSD de l'orientation locale de chaque grain (pour le cas étudié les grains sont colonnaires : un seul grain traverse l'épaisseur de la sous-couche), complétée par une idéalisation de la rugosité de surface. Cette dernière est déduite d'observations au MEB où les bourrelets d'oxydes



FIGURE 3 – Essai de compression pour un échantillon d'AM1 revêtu C1A, vieilli 20h à 1050°C (a) image déformée; (b) champ de déformation dans la direction de compression (ici verticale) obtenue à partir de (a) et d'une image de référence non présentée; (c) état final; (d) zoom sur la zone encadrée pour le champ (b) superposée avec l'état écaillé (c)



FIGURE 4 – (a) surface de l'oxyde observée au MEB; (b) Profile idéalisé de l'oxyde; (c) Maillage de la couche d'oxyde; (d) Détail du maillage de l'oxyde situé au dessus d'un grain NiAl

correspondent plus ou moins à la position des joints de grains, figure 4(a). On approxime donc le bourrelet par une forme sinusoïdale, centrée sur le joint de grains, complétée par une partie lisse au dessus du grain de sous-couche, figure 4(b à d). Le modèle utilisé est élastique isotrope pour l'oxyde et le comportement de chaque grain est décrit à l'aide d'un modèle de plasticité cristalline intégrant l'orientation du grain et les systèmes de glissement typiques d'un matériau cubique centré [Maurel et al., 2013a].



FIGURE 5 – Déformation principale minimale en surface de la couche d'oxyde (a) après refroidissement (b) après compression mécanique dans la direction verticale. L'échelle est la même pour tous les champs de déformation.

Ainsi, on retrouve les localisations de la déformation observées expérimentalement : par effet de concentration de contrainte, au pieds de chaque bourrelet d'oxyde, on atteint localement le maximum de déformation de compression, figure 5(a). Cet effet apparaît à chaque refroidissement. Si on ajoute une déformation mécanique, c'est la nature polycristalline de la sous-couche qui favorise les hétérogénéités de déformation et donc d'écaillage, figure 5(b). Cet effet est critique pour des cas de chargement thermo-mécanique.

4.2 Intégration des dispersions liées à la microstructure à une échelle macroscopique

Afin de quantifier efficacement l'écaillage de l'oxyde de croissance, nous utilisons la connaissance des mécanismes d'écaillage de l'oxyde mis en évidence à l'échelle de la microstructure pour bâtir des modèles macroscopiques permettant d'intégrer ces dispersions, figure 6. On reprend pour cela la même méthode expérimentale en privilégiant des mesures à une échelle supérieure. De fait on peut intégrer les mesures à l'échelles d'une surface élémentaire représentative du comportement à l'écaillage de ce revêtement [Harvey, 2011]. Cette échelle permet de mesurer les localisations de la déformation, et donc l'influence sur le phénomène d'écaillage de l'orientation du monocristal utilisé comme substrat, figure 6(b) et (c). Cet effet devient critique pour les barrières thermiques [Maurel et al., 2011].

Une modélisation de type Weibull permet alors de rendre compte des niveaux d'écaillage en fonction des niveaux de déformation appliqués et de vieillissement atteints par le système.

4.3 Modélisation de l'écaillage de la barrière thermique

Si l'on reprend le scénario proposé pour la ruine de la barrière thermique, nous pouvons distinguer deux phases : la première correspond à une phase d'endommagement - principalement à haute température - fortement corrélée aux évolutions microstructurales des



FIGURE 6 – Méthodologie utilisée pour établir une loi d'écaillage d'oxyde fonction de la déformation locale, cas de l'AM1 revêtu NiAl (a) éprouvette diabolo utilisée, (b) champ d'écaillage mesurée au MEB après assemblage des images rétrodiffusées, (c) mesure de déformation et (d) modèle de Weibull en déformation pour l'écaillage pour deux temps d'oxydation différents [Harvey, 2011]

couches constituant le revêtement barrière thermique. La deuxième phase correspond à la ruine de la couche céramique par écaillage lors du refroidissement du système. Nous découplons donc l'endommagement (intégrant germination et croissance de porosité, croissance de micro-fissures et délaminage) de la rupture finale du système. En effet, tout se passe comme si pour une résistance globale de l'interface céramique/sous-couche, chaque refroidissement venait tester par compression la qualité de cette interface.

La proposition que nous faisons est de définir la ruine par écaillage à l'aide d'une déformation critique,  $\varepsilon_c$ , elle-même fonction de l'endommagement et du vieillissement des couches, D:

$$\varepsilon_c = \varepsilon_c^0 [D(T, t; \sigma)] \tag{2}$$

L'évolution du terme d'endommagement dépend également de l'histoire thermo-mécanique. Il est thermiquement activé et dépend des niveaux de sollicitations à basse et à haute température. A haute température, un couplage fort a été mis en évidence entre le chargement mécanique et les vitesses de diffusion et d'oxydation. A basse température, c'est l'endommagement des interfaces et/ou la micro-fissuration de l'oxyde qui peuvent conduire à des raccourcis de diffusion, à l'écaillage local de l'oxyde et à une cinétique d'oxydation résultante plus élevée. L'intégration de cette analyse, à l'aide d'un post-processeur de calcul éléments finis, permet d'établir sur pièce réelle une cartographie des écaillages conforme au retour d'expérience, figure 7.



FIGURE 7 – Résultats d'écaillage sur la face intrados d'une aube de turbine HP en condition FMT, le bord d'attaque est à gauche, les zones rouges écaillent en premier  $(N_f/N_{max} \simeq 10\%)$  et sont suivies par les zones oranges  $(N_f/N_{max} \simeq 50\%)$ , les zones blanches n'écaillent pas [Courcier et al., 2011, Maurel et al., 2011]

## 5 CONCLUSION

Dans le domaine des très hautes températures, l'oxydation sèche conduit à des modifications microstructurales majeures dans les barrières thermiques. La croissance d'oxyde, la diffusion (lacunaire et atomique), les changements de phase ou encore l'augmentation de rugosité sont fonctions des conditions de fatigue mécano-thermique et de l'atmosphère de travail. La microstructure influence directement le degré d'endommagement et donc la durée de vie des barrières thermiques. Elles sont l'objet de recherches intenses pour développer de nouvelles compositions et techniques de dépôt afin de résister au mieux aux dégradations à haute température. La caractérisation des mécanismes d'endommagement et leur modélisation est un enjeu critique pour l'optimisation de l'utilisation de ces revêtements et sont remises en jeu à chaque nouvelle évolution des matériaux employés.

### Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier : Jean-Yves Guédou et Arnaud Longuet (Snecma/Groupe Safran) pour le soutien et le financement des études, François Hild (LMT Cachan) pour la mise à disposition du logiciel CorreliLMT. Les personnes ayant participé à la réalisation de l'ensemble des résultats présentés ici sont aussi grandement remerciées, en particulier Christophe Courcier, Mark Harvey, Pierre de Bodman, Pierre Sallot, Lukas Helfen (ESRF/KIT), Thilo Morgeneyer, Steve Duvinage et Matthieu Rambaudon.

### REFERENCES

- [Besnard et al., 2006] Besnard, G., Hild, F., and Roux, S. (2006). 'finite-element' displacement fields analysis from digital images : Application to Portevin-le Chatelier bands. *Experimental Mechanics*, 46(6) :789–803.
- [Bickard, 1998] Bickard, A. (1998). Endommagement sous sollicitations thermiques et mécaniques d'une barriere thermique et d'un aluminiure de nickel déposés sur un superalliage monocristallin. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris, France.

[Courcier et al., 2011] Courcier, C., Maurel, V., Rémy, L., Quilici, S., Rouzou, I., and Phelip-

peau, A. (2011). Interfacial damage based life model for EB-PVD thermal barrier coating. Surface and Coatings Technology, 205(13-14):3763 – 3773.

- [Evans et al., 2001] Evans, A. G., Mumm, D. R., Hutchinson, J. W., Meier, G. H., and Pettit, F. S. (2001). Mechanisms controlling the durability of thermal barrier coatings. *Progress* in Materials Science, 46(5):505 - 553.
- [Evans, 2011] Evans, H. E. (2011). Oxidation failure of TBC systems : An assessment of mechanisms. Surface and Coatings Technology, 206(7) :1512 - 1521.
- [Harvey, 2011] Harvey, M. (2011). Ruine de revêtements aluminoformeurs induite par oxydation et chargement mécanique combinés. Thèse de Doctorat, Mines ParisTech.
- [Harvey et al., 2008] Harvey, M., Courcier, C., Maurel, V., and Rémy, L. (2008). Oxide and TBC spallation in [beta]-NiAl coated systems under mechanical loading. Surface and Coatings Technology, 203(5-7):432 – 436.
- [Helfen et al., 2009] Helfen, L., Baumbach, T., Cloetens, P., and Baruchel, J. (2009). Phasecontrast and holographic computed laminography. *Appl. Phys. Lett.*, 94 :104103.
- [Maurel et al., 2011] Maurel, V., de Bodman, P., and Rémy, L. (2011). Influence of substrate strain anisotropy in TBC system failure. Surface and Coatings Technology, 206(7) :1634 – 1639.
- [Maurel et al., 2012] Maurel, V., Helfen, L., N'Guyen, F., Koster, A., Michiel, M. D., Baumbach, T., and Morgeneyer, T. (2012). Three-dimensional investigation of thermal barrier coatings by synchrotron-radiation computed laminography. *Scripta Materialia*, 66(7):471 - 474.
- [Maurel et al., 2013a] Maurel, V., Rémy, L., Harvey, M., Tezenas du Montcel, H., and Koster, A. (2013a). The respective roles of thermally grown oxide roughness and NiAl coating anisotropy in oxide spallation. *Surf. Coat. Technol.*, in press.
- [Maurel et al., 2013b] Maurel, V., Soulignac, R., Helfen, L., Morgeneyer, T., Koster, A., and Rémy, L. (2013b). Three-dimensional damage evolution measurement in EBPVD TBC using synchrotron laminography. Oxidat. of Metals, In press.

[Rémy et al., 2003] Rémy, L., Alam, A., and Bickard, A. (2003). Thermo-mechanical creepfatigue of coated systems. *ASTM*, STP 1428 :98–111.

- [Rivoaland et al., 2003] Rivoaland, L., Maurice, V., Josso, P., Bacos, M.-P., and Marcus, P. (2003). The effect of sulfur segregation on the adherence of the thermally-grown oxide on NiAl (ii) : The oxidation behavior at 900°C of standard, desulfurized or sulfur-doped nial(001) single-crystals. Oxidation of Metals, 60 :159–178.
- [Sallot, 2012] Sallot, P. (2012). Modélisation de la durée de vie d'un système aluminoformeur. Thèse de Doctorat, Mines ParisTech.
- [Smialek et al., 2008] Smialek, J. L., Zhu, D., and Cuy, M. D. (2008). Moisture-induced delamination video of an oxidized thermal barrier coating. *Scripta Materialia*, 59(1):67 – 70.
- [Tolpygo and Clarke, 2000] Tolpygo, V. and Clarke, D. (2000). Surface rumpling of a (Ni,Pt)Al bond coat induced by cyclic oxidation. *Acta Mater.*, 48 :3283–3293.
- [Wellman et al., 2010] Wellman, R., Whitman, G., and Nicholls, J. (2010). Cmas corrosion of EB PVD TBCs : Identifying the minimum level to initiate damage. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 28(1) :124 132.