燃料包壳用 FeCrAl 合金变形行为与热加工图研究

柏广海，薛 飞，张晏玮，刘二伟，尚 灿，刘向兵，耿建桥，余伟炜

(苏州热工研究院有限公司，江苏 苏州 215004)

摘 要：通过热模拟压缩试验研究了燃料包壳用 FeCrAl 合金在形变温度为 800~1000 ℃、应变速率为 0.001~1 s^{-1} 工艺条件下的热变形行为，采用 Arrhenius 双曲线正弦函数模型建立了 FeCrAl 高温变形本构方程，结合动态材料模型绘制了 FeCrAl 在应变量为 0.05~0.8 的热加工图。结果显示，FeCrAl 流变应力随着变形温度的升高而降低、随着应变速率的升高而增大，变形温度与应变速率均会影响其组织演化。根据热加工图，FeCrAl 流变失稳区随着应变量的增加先扩展后趋于稳定，其最佳热加工工艺参数确定为：应变量 ε=0.1 时，应变速率 $\dot{\varepsilon}$ <0.008 s^{-1}、变形温度为 880~1000 ℃；应变量 $\varepsilon \geqslant 0.3$ 时，应变速率 $\dot{\varepsilon}$ <0.027 s^{-1}、变形温度>950 ℃。

关键词：燃料包壳；FeCrAl 合金；高温变形行为；本构方程；热加工图

中图法分类号：TG131 **文献标识码**： A **文章编号**：1002-185X(2020)07-2340-06

为应对核反应堆发生事故引起的严重后果，开发安全性能更高的包壳材料，已成为确保核电安全运行的迫切问题[1,2]。2012 年，美国能源部率先发起名为“事故容错燃料研究与发展计划基金”[3]，旨在开发出新型事故容错燃料（accident-tolerant fuels，ATF），以减缓包壳与水蒸气之间的相互作用，提升核反应堆在严重事故下的安全可靠性。此后，其它主要核电国家也相继展开了关于事故容错燃料包壳的研制工作[4]。目前，研究主要集中于锆合金涂层、FeCrAl 合金、Mo 合金、SiC 陶瓷材料等包壳材料等方面[3,4]。其中，FeCrAl 合金因其在抗水蒸气氧化、高温力学、导热、耐腐蚀及抗辐照等方面表现优异，有希望替代传统锆合金包壳[5]。

燃料包壳用 FeCrAl 合金是以 Fe 为基体，并添加少量 Cr、Al 和其它微量元素（如 Mo、Y 等）加工成的合金。相关研究表明，FeCrAl 合金由于多种元素的加入容易在其内部产生难熔化合物沉淀相，导致锻态 FeCrAl 合金呈现高强度、低塑性特征，不利于其轧制阶段的加工[6]。锻造和热挤压是反应堆结构材料的主要加工工艺方法[7]，而热加工过程中变形量、变形速率和温度等因素势必对FeCrAl合金显微组织、力学性能造成显著影响[8]。目前鲜有关于燃料包壳用 FeCrAl 合金高温变形行为及其热加工性能研究方面的报道。因此，研究 FeCrAl 合金的高温变形行为及其热加工性能对于准确控制合金组织、提高性能等都具有十分重要的意义。

本工作将对 FeCrAl 合金进行热模拟压缩试验，以研究其在高温下的流变行为、组织特征和热加工图，为合理制定燃料包壳用 FeCrAl 合金热加工工艺提供指导。

1 实 验

实验所用FeCrAl合金名义化学成分为（质量分数，%）Cr，13；Al，4.8；Mo，2.1； Si，0.2；余 Fe。FeCrAl 合金经熔炼、锻造后，在 800 ℃下对 FeCrAl 样品进行再结晶退火处理，其退火后金相显微组织如图 1 所示。随后将 FeCrAl 合金制成尺寸为 Φ10 mm × 15 mm 的圆柱试样，在 Gleeble-3800 型热模拟试验机上进行等温恒应变速率压缩试验。压缩试验选取的变形温度为 800、850、900、950 及 1000 ℃，应变速率为 0.001、0.01、0.1 及 1 s^{-1}，最大变形量为 70%，保温时间为 5 min。压缩后期，通过淬水处理使样品快速冷却至室温，以保留其高温压缩后的变形组织。将压缩后的试样沿轴向切开观察微观组织，合金所用腐蚀剂为 $HF:HNO_3:H_2O$ = 1:10:50。

2 结果与讨论

2.1 FeCrAl 合金流变应力曲线

不同参数的热压缩后 FeCrAl 合金应力应变曲线如图 2 所示。可以看到，FeCrAl 合金应力应变曲线具有相似的特征：在形变初期，材料变形量均很小，处

收稿日期：2019-07-20

基金项目：国家自然科学基金（U1867202，U1867215）；苏州市 2016 产业技术创新专项（SYG201634）

作者简介：柏广海，男，1981 年生，博士，高级工程师，苏州热工研究院有限公司，江苏 苏州 215004，电话：0512-83552352，E-mail: baiguanghai@foxmail.com

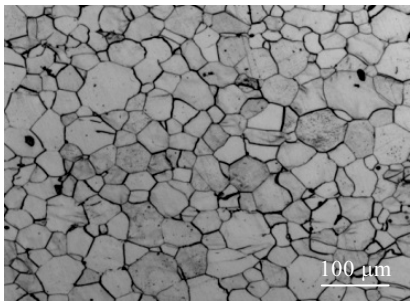


图 1　FeCrAl 合金退火后显微组织

Fig.1　Microstructure of FeCrAl alloy after annealing

于弹性形变状态；随着形变量超出弹性形变范围，应力随形变量的增大而增加的趋势逐渐减弱。在应变速率相同时，材料的流变应力随着变形温度的升高而降低。这主要归因于两方面：(1) 温度的升高会引发热激活效应增强、原子运动加剧，促进动态回复或动态再结晶的发生[9]；(2) 挤压变形组织发生球化。在变形温度相同时，材料的流变应力则随着应变速率的升高而增大。这主要是由于应变速率越大，达到相同变形量所需要的时间会越短，材料回复和再结晶时间越短，加工硬化越明显，表现出流变应力增大。

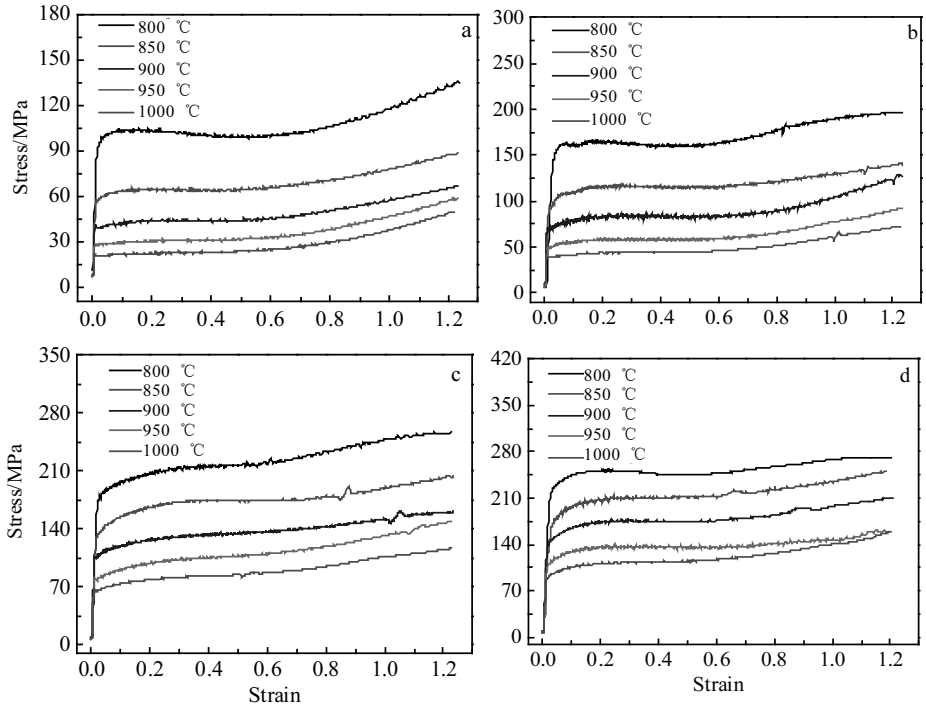


图 2　不同变形条件下 FeCrAl 合金应力应变曲线

Fig.2　Stress-strain curves of FeCrAl alloy under different conditions: (a) 0.001 s^{-1}, (b) 0.01 s^{-1}, (c) 0.1 s^{-1}, and (d) 1 s^{-1}

2.2　FeCrAl 合金高温变形本构方程

高温塑性是金属材料重要的性能，热加工过程中通过热流变应力对材料的高温塑性进行表征。为了准确分析 FeCrAl 合金的热变形行为以及预测其高温流变应力，此处采用 Sellars 等人[10]提出的 Arrhenius 双曲线正弦函数模型来描述 FeCrAl 合金在高温塑性变形条件下流变应力与应变速率的本构关系，即：

$$\dot{\varepsilon}=A\left[\sinh\left(\alpha\sigma\right)\right]^{n}\exp\left(-Q/RT\right) \tag{1}$$

式中，$\dot{\varepsilon}$ 为应变速率（s^{-1}），σ 为指定应变量的流变应力（MPa），n 为应力指数，Q 为高温变形激活能（$J\cdot mol^{-1}$），T 为变形温度（K），R 为摩尔气体常数[8.314 $J\cdot(mol\cdot K)^{-1}$]，A 为结构因子（s^{-1}），α 为应力水平参数（MPa^{-1}）。

应变速率与变形温度的关系也可用温度补偿变形速率因子 Z 来表示[11]：

$$Z=\dot{\varepsilon}\exp\left(Q/RT\right) \tag{2}$$

由式（1）与（2）可得

$$Z=A\left[\sinh\left(\alpha\sigma\right)\right]^{n} \tag{3}$$

$\alpha\sigma\leqslant 0.8$ 时，即在较低的应力水平下，式（1）可简化为：

$$\dot{\varepsilon}=A_1\sigma^{n_1}/\exp\left(-Q/RT\right) \tag{4}$$

$\alpha\sigma\geqslant 1.2$ 时，即在较高应力水平下，式（1）可简化为：

$$\dot{\varepsilon}=A_2\exp\left(\beta\sigma\right)\exp\left(-Q/RT\right) \tag{5}$$

式中，A_1、A_2、β 均为材料常数，n_1 为应力指数，$\beta=\alpha n_1$。

根据 FeCrAl 合金在不同变形条件下的应力应变数据确定本构方程中的材料常数。在同一温度下进行

变形，并假定在一定温度范围内 Q 值保持不变，对式（4）和（5）两边分别求自然对数可得：

$$\ln\dot{\varepsilon}=A_3+n_1\ln\sigma \tag{6}$$

$$\ln\dot{\varepsilon}=A_4+\beta\sigma \tag{7}$$

根据不同温度下的应力和应变速率数据，分别绘制对应的 $\ln\sigma$-$\ln\dot{\varepsilon}$ 和 σ-$\ln\dot{\varepsilon}$ 关系图，采用最小二乘法进行线性回归，结果如图 3 所示。而由式（6）和式（7）可知，图 3a 中回归直线斜率倒数的平均值为 n_1，图 3b 中回归直线斜率倒数的平均值为 β，则有：n_1=5.5147，β=0.0575 MPa^{-1}，$\alpha=\beta/n_1$=0.0104 MPa^{-1}。

在同一温度下进行变形，并假定在一定温度范围内 Q 值保持不变，对式（1）两侧分别取自然对数，再进行微分，可得变形激活能 Q：

$$Q=R\left\{\frac{\partial\ln\dot{\varepsilon}}{\partial\ln\left[\sinh\left(\alpha\sigma\right)\right]}\right\}_T\left\{\frac{\partial\ln\left[\sinh\left(\alpha\sigma\right)\right]}{\partial T^{-1}}\right\}_T \tag{8}$$

根据变形温度、流变应力和应变速率值，绘制不同变形温度下的 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$-$\ln\dot{\varepsilon}$ 关系图和不同应变速率下的 $\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$-T^{-1} 关系图，同时采用最小二乘法进行线性回归，如图 4 所示。分别取图 4a 与 4b 中回归直线斜率倒数或斜率的平均值，代入式（8）可得平均变形激活能 Q 值为 363.32 kJ·mol^{-1}。

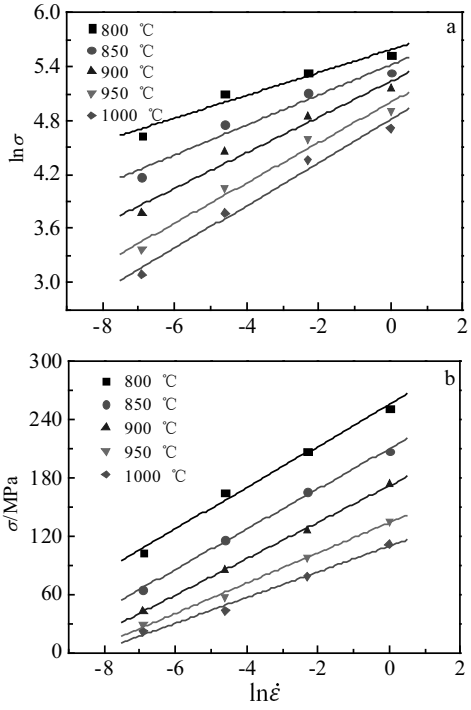


图 3　FeCrAl 合金流变应力与应变速率的关系

Fig.3　Relationships between flow stress and strain rate: (a) $\ln\sigma$-$\ln\dot{\varepsilon}$ and (b) σ-$\ln\dot{\varepsilon}$

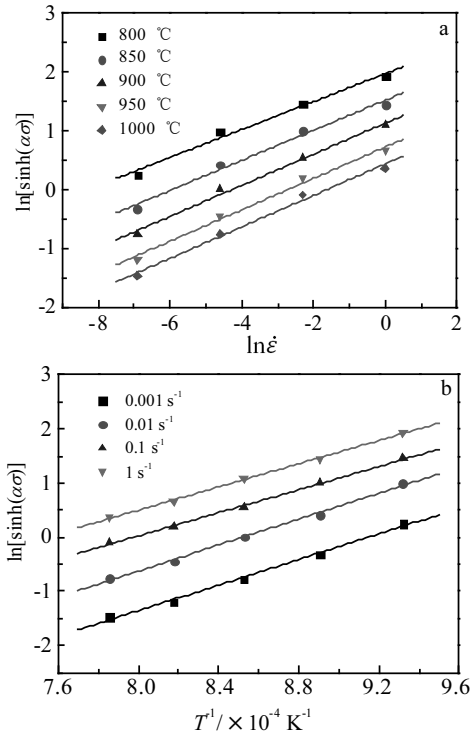


图 4　$\ln[(\sinh(\alpha\sigma))$与应变速率和变形温度的关系

Fig.4　Relationships of $\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$-$\ln\dot{\varepsilon}$ (a) and $\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$-T^{-1} (b)

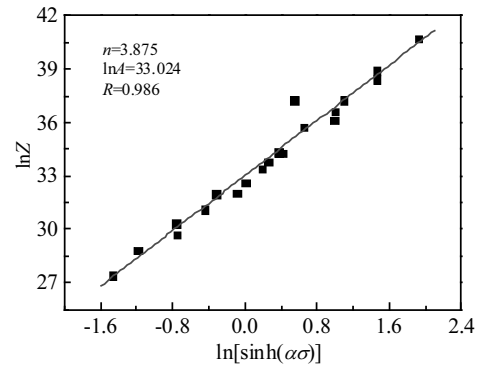


图 5　ln$Z$-$\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$关系

Fig.5　Relationships of ln$Z$-$\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$

对式（3）两边分别求自然对数可得

$$\ln Z=\ln A+n\ln\left[\sinh\left(\alpha\sigma\right)\right] \tag{9}$$

将变形激活能、变形温度和应变速率代入式（2）求得参数 Z 值，并绘制 ln$Z$-$\ln[\sinh(\alpha\sigma)]$关系图，同时采用最小二乘法进行线性回归（如图 5）。由式（9）可知，图 5 中直线斜率即为 n，截距即为 ln$A$，则有：n = 3.875，ln$A$=33.024（即 A=2.2 × 10^{14} s^{-1}）。

综上，将求得的 A、n、α 和 Q 参数代入式（1）即可获得 FeCrAl 合金在 800~1000 ℃范围内的高温压

缩变形本构方程，如下：

$$\dot{\varepsilon} = 2.2\times10^{14}\left[\sinh\left(0.0104\sigma\right)\right]^{3.875}\exp\left(-363320/RT\right) \quad (10)$$

2.3 FeCrAl 合金热加工图

根据热加工图可准确判别材料变形过程中的流变失稳区，还可由非失稳区内最大功率耗散系数区和显微组织来选择最佳的热加工工艺参数，以减少或避免加工过程中材料产生裂纹等缺陷[12]。Prasad 等人[13]基于动态材料模型（dynamic materials model, DMM）建立了热加工图，目前已被广泛的应用于金属塑性成形热加工工艺设计中。

根据动态材料模型，进行热变形的材料可作为一个非线性能量耗散单元。由耗散结构理论可知，外界输入材料的能量主要耗散于两方面：(1) 材料发生塑性变形所消耗的能量（耗散量，G）；(2) 材料发生组织演化（如相变、回复与再结晶等）所消耗的能量（耗散协量，J）。这二者所占比例可用应变速率敏感因子 m 表示[13]，即

$$m=\frac{\partial J}{\partial G}=\frac{\dot{\varepsilon}\partial\sigma}{\sigma\partial\dot{\varepsilon}}=\frac{\partial\ln\sigma}{\partial\ln\dot{\varepsilon}} \quad (11)$$

在理想线性耗散状态下，m 值为 1，此时耗散协量达到其最大值 J_{max}。一般情况下，m 值与变形温度和应变速率呈非线性关系，值为 0~1 之间。

材料成形过程中显微组织演变所耗散的能量同线性耗散能量的比例关系可用 η 进行表示[14]，称为功率耗散效率，可通过下式进行计算：

$$\eta = J/J_{\max} = 2m/(m+1) \quad (12)$$

功率耗散效率随变形温度和应变速率的变化构成功率耗散图，其不同区域与特定的微观机制有直接关系。通常，高 η 值区域对应着最佳的加工区[15]。

为避免在加工过程中材料产生缺陷并获得最为理想的加工工艺参数，Prasad 等人[16]依据不可逆热力学极值原理建立了塑性流变失稳判据，来预测金属材料热加工失稳工艺参数区域[9,17]。该失稳判据可表示如下：

$$\xi(\dot{\varepsilon}) = \frac{\partial\ln\left[m/(m+1)\right]}{\partial\ln\dot{\varepsilon}}+m<0 \quad (13)$$

在能量耗散图中，$\xi(\dot{\varepsilon})$负值区域即为塑性流动失稳区。由已得的 FeCrAl 合金流变应力（以应变量介于 0.05~0.8 的流变应力分别进行计算），可绘制不同温度下的 $\ln\sigma$-$\ln\dot{\varepsilon}$ 关系图，并对其进行三次多项式拟合可得不同温度下的 $\ln\sigma$ 的表达式，进而结合式（11）可得不同变形温度和应变速率下的 m 值。再将 m 值代入式（12），即可得到 FeCrAl 合金的功率耗散图。而由 m 值还可绘制 $\ln[m/(m+1)]$-$\ln\dot{\varepsilon}$ 关系图，进而得到其三次多项式拟合表达式；再结合式（13），即可得到 FeCrAl 合金的加工失稳图。最后将 FeCrAl 合金的功率耗散图与加工失稳图进行叠加即可得到其热加工图，如图 6 所示。

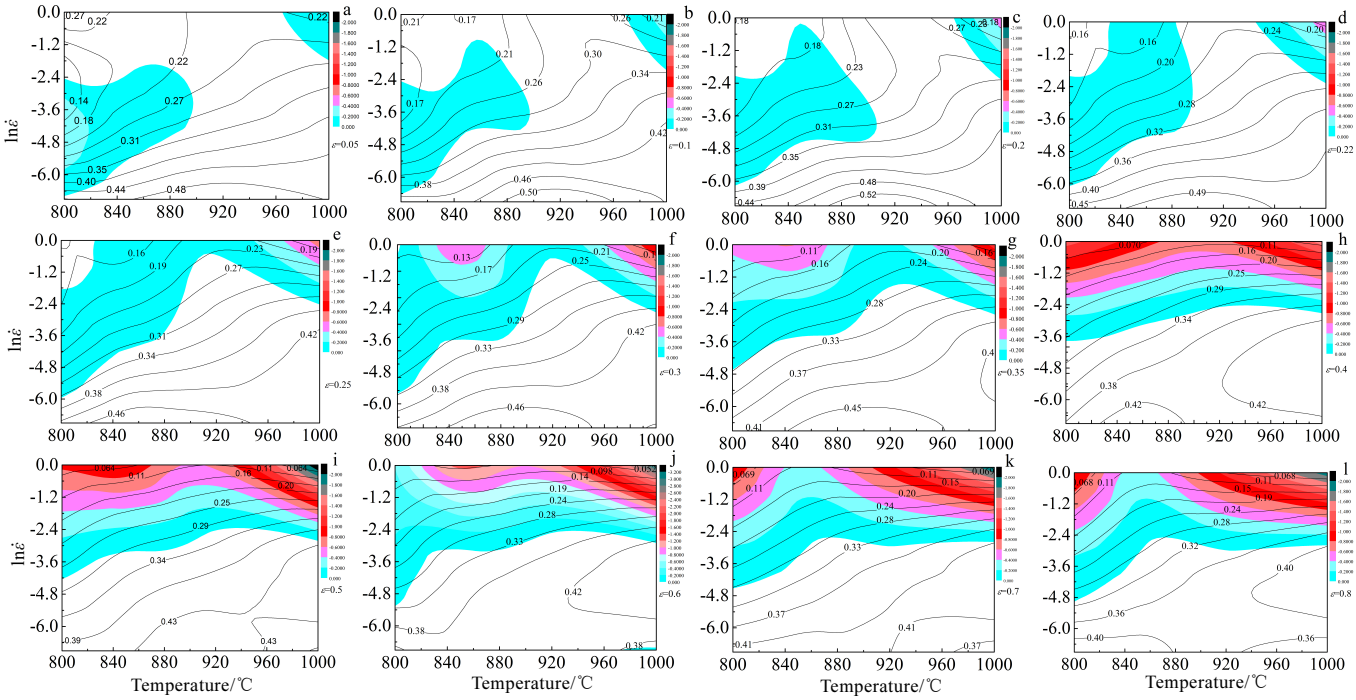


图 6　不同应变量下 FeCrAl 合金的热加工图

Fig.6　Processing maps for the FeCrAl alloy at different strains: (a) ε = 0.05, (b) ε = 0.1, (c) ε = 0.2, (d) ε = 0.22, (e) ε = 0.25, (f) ε = 0.3, (g) ε = 0.35, (h) ε = 0.4, (i) ε = 0.5, (j) ε = 0.6, (k) ε = 0.7, and (l) ε = 0.8

从图 6 可知，当应变量较小时（$\varepsilon < 0.3$），应变量会对 FeCrAl 合金热塑性变形产生较大影响，失稳区随着应变量的增加而迅速扩展。当应变量超过 0.3 后，失稳区范围趋于稳定，应变量的增加对 FeCrAl 合金热塑性变形的影响不再明显。在同一应变温度下，随着应变速率的降低，功率耗散效率整体呈增大趋势；而在同一应变速率下，随着应变温度的升高，功率耗散效率整体呈增大趋势。结合 FeCrAl 合金应力应变曲线可知，这主要由于流变应力的下降使得作用于材料的能量更多的被组织演化过程而非塑性变形过程所消耗。

在小应变量范围内（$\varepsilon < 0.3$），材料塑性流变失稳主要发生在低温低应变速率和高温高应变速率 2 个区域内。在这些流变失稳区，对材料进行热加工容易产生组织缺陷，从而使其力学性能受到影响。而在中温高应变速率区域，虽未出现流变失稳，但其功率耗散效率却较低，不利于热加工。在大应变量范围内（$\varepsilon > 0.3$），材料塑性流变失稳区均位于高应变速率范围内。在中温低应变速率区和高温中应变速率区，功率耗散效率较高，且避开了流变失稳区。其中，高温中应变速率的动态再结晶区内，材料的加工性能好，组织易于控制，热加工时应当优先选择在该区域内进行。动态再结晶区的功率耗散效率峰值对应的应变速率可提高到 0.1 s^{-1}，在该区域可进行轧制、挤压等加工工艺。而超塑变形区对应的变形温度和应变速率分别为 860~960 ℃、0.001~0.0025 s^{-1}，该区域有着较高的功率耗散效率，可进行等温变形工艺。

综上分析，可为 FeCrAl 合金热加工推荐如下工艺参数：(1) 应变量 $\varepsilon = 0.1$ 时，应变速率 $\dot{\varepsilon} < 0.008\ s^{-1}$、变形温度 T=880~1000 ℃；(2) 应变量 $\varepsilon \geqslant 0.3$ 时，应变速率 $\dot{\varepsilon} < 0.027\ s^{-1}$、变形温度 $T > 950$ ℃。

3　结　论

1）燃料包壳用 FeCrAl 合金高温变形流变应力随温度的升高而降低，随应变速率的升高而增大。合金在 800~1000 ℃下的高温变形激活能 Q=363.32 $kJ \cdot mol^{-1}$，高温变形本构方程：

$$\dot{\varepsilon} = 2.2 \times 10^{14} [\sinh(0.0104\sigma)]^{3.875} \exp(-363.32 \times 10^3 / RT)$$

2）根据 FeCrAl 合金热加工图，在小的应变量 $\varepsilon < 0.3$ 时，FeCrAl 合金存在 2 个失稳区，随着应变量的增加，失稳区会迅速扩展；当应变量超过 0.3 后，失稳区合二为一并趋于稳定，应变量的增加对 FeCrAl 合金热塑性变形的影响不再明显。

3）FeCrAl 合金热加工变形推荐参数：(1) ε=0.1 时，$\dot{\varepsilon} < 0.008\ s^{-1}$、$T$=880~1000 ℃；(2) $\varepsilon \geqslant 0.3$ 时，$\dot{\varepsilon} < 0.027\ s^{-1}$、$T > 950$ ℃。

参考文献　References

[1] Zhou Jun(周　军), Li Zhongkui(李中奎). *Materials China*(中国材料进展)[J], 2014, 33(9): 554

[2] Zinkle S J, Terrani K A, Gehin J C *et al*. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2014, 448(1): 374

[3] Duan Z G, Yang H L, Satoh Y *et al*. *Nuclear Engineering and Design*[J], 2017, 316: 131

[4] Liu Junkai(刘俊凯), Zhang Xinhu(张新虎), Yun Di(恽　迪). *Materials Review*(材料导报)[J], 2018, 32(11): 1757

[5] Zhou Jun(周　军), Qiu Shaoyu(邱绍宇), Du Peinan(杜沛南) *et al*. *Materials Review*(材料导报)[J], 2017, 31(2): 47

[6] Stott F H, Wood G C, Stringer J. *Oxidation of Metals*[J], 1995, 44: 113

[7] Sun Chaoyang(孙朝阳), Li Yamin(李亚民), Xiang Yu(祥　雨) *et al*. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程) [J], 2016, 45(3): 688

[8] Wu Zongpei(吴宗佩), Yi Wei(易　伟), Yang Zhongbo(杨忠波) *et al*. *Atomic Energy Science and Technology*(原子能科学技术)[J], 2019, 53(3): 385

[9] Qu Fengsheng(曲凤盛), Zhou Jie(周　杰), Liu Xuguang(刘旭光) *et al*. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(1): 120

[10] Sellars C M, McTegart W J. *Acta Metallurgica*[J], 1966, 14(9): 1136

[11] Zener C, Hollomon J H. *Journal of Applied Physics*[J], 1944, 15(1): 22

[12] Prasad Y V R K, Rao K P, Sasidhara S. *Hot Working Guide: A Compendium of Processing Maps, Second Edition*[M]. OH: ASM International, Metals Park, 1997: 1

[13] Prasad Y V R K, Gegel H L, Doraivelu S M *et al*. *Metallurgical Transactions A*[J], 1984, 15(10): 1883

[14] Zhou Yigang(周义刚), Zeng Weidong(曾卫东), Yu Hanqing(俞汉清) *et al*. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2005, 34(3): 715

[15] Robi P S, Dixit U S. *Journal of Materials Processing Technology*[J], 2003, 142(1): 289

[16] Prasad Y V R K. *Indian Journal of Technology*[J], 1990, 28: 435

[17] Xu Meng(徐　猛), Jia Weijun(贾蔚菊), Zhang Zhihao(张志豪) *et al*. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(9): 368

Hot Deformation Behavior and Processing Maps of FeCrAl Alloy for Nuclear Fuel Cladding

Bai Guanghai, Xue Fei, Zhang Yanwei, Liu Erwei, Shang Can, Liu Xiangbing, Geng Jianqiao, Yu Weiwei

(Suzhou Nuclear Power Research Institute, Suzhou 215004, China)

Abstract: Hot working of FeCrAl alloy for nuclear fuel cladding was investigated by thermal simulation compression experiment under deformation temperature of 800~1000 °C and strain rate of 0.001~1 s^{-1}. The constitutive equation of the hot deformation behavior of FeCrAl alloy was established by Arrhenius hyperbolic sine function. Based on the dynamic material model, the processing map of FeCrAl alloy was derived for strain of 0.05~0.8. The results show that the flow stress of FeCrAl alloy decreases with the increase of deformation temperature and increases with the increase of strain rate. Both the deformation temperature and strain rate will affect the microstructure evolution. According to the processing map, the instability zone of flow behavior of FeCrAl alloy expands and then stabilizes with the increase of strain, and the optimal hot processing safety areas of the alloy are determined as follows: (1) the strain rate $\dot{\varepsilon}$ <0.008 s^{-1} and the deformation temperature 880~1000 °C (when the strain is ε=0.1); (2) the strain rate $\dot{\varepsilon}$ < 0.027 s^{-1} and the deformation temperature > 950 °C (when the strain is $\varepsilon \geqslant 0.3$).

Key words: nuclear fuel cladding; FeCrAl alloy; hot deformation behavior; constitutive equation; processing maps

---

Corresponding author: Bai Guanghai, Ph. D., Senior Engineer, Suzhou Nuclear Power Research Institute, Suzhou 215004, P. R. China, Tel: 0086-512-83552352, E-mail: baiguanghai@foxmail.com