

Zr-4 合金热变形行为及物理本构模型

冯 瑞, 王克鲁, 鲁世强, 李 鑫, 周 琰, 钟明君

(南昌航空大学 航空制造工程学院, 江西 南昌 330063)

摘要: 利用 Gleeble-3500 型热模拟试验机对 Zr-4 合金试样进行等温恒应变速率压缩实验, 对其热变形行为进行分析, 综合考虑变形温度对 Young's 模量和自扩散系数的影响, 建立了 Zr-4 合金基于应变耦合的物理本构模型。研究结果表明: 合金的峰值应力对变形温度和应变速率敏感, 峰值应力会随应变速率的增加或变形温度的降低而增大; 基于应变耦合构建的物理本构模型能够较好地预测合金在热变形过程中的流变应力, 其相关系数 R 为 0.986, 预测值偏差在 10% 以内的数据点占 93.2%, 平均相对误差为 6.3%。

关键词: Zr-4 合金; 热变形行为; 应变耦合; 物理本构模型

中图法分类号: TG146.4⁺¹⁴

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2021)02-0525-06

锆合金以其比强度高、熔点高、热中子吸收截面小、耐高温和抗蒸汽腐蚀等优点, 在核反应堆、航空航天和医疗等领域得到了快速发展^[1-4]。Zr-4 合金综合性能优良, 具有良好的塑性加工性能, 广泛应用于核动力压水堆和沸水堆的燃料包壳、堆芯结构等部件^[5,6]。进入 21 世纪以来, 对核反应堆中应用的 Zr-4 合金的热加工工艺要求越来越高。由于 Zr-4 合金微观组织和力学性能对其加工工艺比较敏感, 因此, 迫切需要构建满足合金实际生产需求的高精度本构模型, 对优化热加工工艺参数具有重要理论指导价值。

大多学者^[7-9]采用传统的 Arrhenius 型方程来构建合金的本构模型, 如王蕊宁等^[7]在 Zr-4 合金的热变形过程中采用双曲正弦方程验证了其适用性。虽然 Arrhenius 型方程可以较为准确地描述流变应力与变形温度和应变速率之间的线性关系, 但是并未考虑到热加工工艺参数对合金材料物理特性的影响, 构建具有材料物理本质特性的本构模型是非常有必要的。Cabrera 等^[10]首次采用引入变形温度对材料自扩散系数和 Young's 模量的影响, 建立了商用合金化碳钢的物理本构模型, 并且预测结果与实验数据吻合较好。之后各国学者^[11-13]分别对铝合金、不锈钢和钛合金等金属材料热变形过程中的流变应力建立了物理本构模型, 均得到了很高的预测精度。综上所述可知, 构建材料的物理本构模型不仅能够高精度地预测流变应力, 又可以体现材料物理本质。但目前对锆合金建立物理本构模型的文章鲜有报道, 本实验通过对 Zr-4 合

金进行等温恒应变速率热压缩实验, 分析真应力-真应变曲线, 建立基于应变耦合的物理本构方程, 并对合金的高温流变行为进行验证, 为合金的塑性加工及有限元数值模拟提供参考。

1 实验

实验材料为铸态 Zr-4 合金, 该合金化学成分如表 1 所示。利用线切割机制成 $\varnothing 8 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$ 的圆柱体试样, 用 Gleeble-3500 型热模拟试验机进行热压缩实验。变形温度设置为 750~1000 °C; 应变速率为 0.001~10 s⁻¹; 高度压下率为 70%, 对应的真应变约为 1.2。为减少试样与压头之间的摩擦, 需要在试样两端加上石墨片。为使试样内部受热均匀, 试验机的升温速率为 5 °C/s, 加热至变形温度保温 3 min, 结束后采用水淬冷却。

2 结果与分析

2.1 流变行为分析

图 1a 和 1b 是 Zr-4 合金在不同变形条件下的真应力-真应变曲线。从图 1 可以看出: 在变形的初始阶段, 流变应力迅速上升, 达到峰值应力后其值随着真应变的增加而缓慢下降。在达到一定真应变后流变应力曲

表 1 Zr-4 合金的化学成分

Table 1 Chemical composition of Zr-4 alloy (ω/%)

Sn	Fe	Cr	Ni	Zr
1.4	0.22	0.12	0.007	Bal.

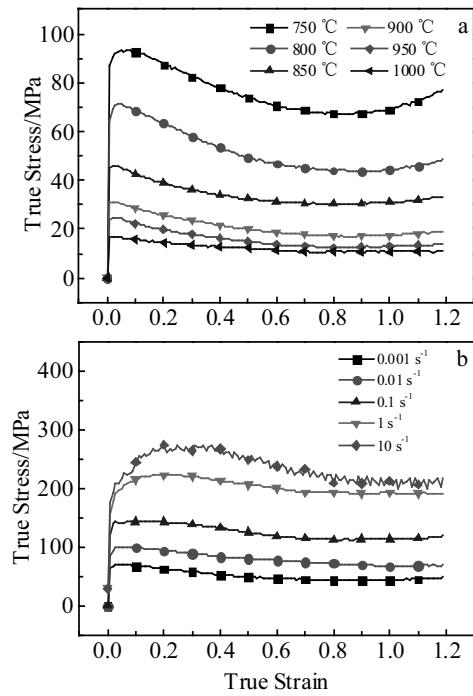


图 1 不同变形条件下 Zr-4 合金真应力-真应变曲线

Fig.1 True stress-true strain curves of Zr-4 alloy under different deformation conditions: (a) 0.001 s^{-1} and (b) $800\text{ }^{\circ}\text{C}$

线保持稳定，呈现稳态流动趋势。这主要是因为在变形初期，加工硬化占据主导地位，流变应力迅速增加。在达到临界应变之后，动态回复和动态再结晶发生，产生的软化效应加剧，故流变应力缓慢下降^[14,15]。图 1a 在真应变值大于 0.8 后，变形温度较低的流变应力曲线出现上翘趋势，流变应力随着真应变的增加而缓慢增加。这可能是因为 Zr 合金具有较高的层错能，低温不易发生动态再结晶，故其软化效应低于加工硬化效应^[14]。

峰值应力是实际生产中进行估算最大变形载荷、模具选型及设备校核的重要依据。图 2a 和 2b 分别为 Zr-4 合金不同变形条件对峰值应力的影响。从图 2 可以看出：在热变形过程中，Zr-4 合金的峰值应力对应变速率和变形温度比较敏感。在低应变速率(0.001 s^{-1})时，峰值应力由 $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的 93.1 MPa 降至 $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的 16.78 MPa ，降低了 82% 。而高应变速率(10 s^{-1})时，峰值应力在同等温度区间降幅为 74% ，表明应变速率对峰值应力的影响较大。主要是由于应变速率增加，材料的变形时间缩短，位错增殖速度减少，动态回复和再结晶不充分，软化效应较弱，加工硬化效应加剧，故峰值应力增加^[16,17]。同理计算可得，在应变速率恒定情况下，变形温度越高，其峰值应力越低，表明峰

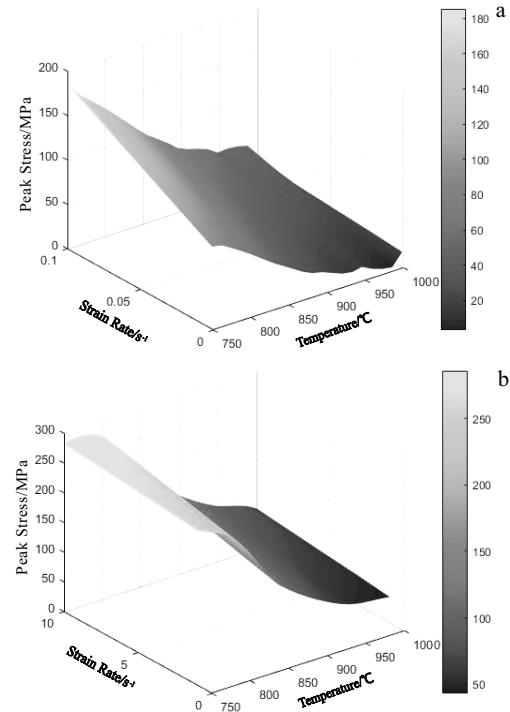


图 2 不同变形条件对 Zr-4 合金峰值应力的影响

Fig.2 Effect of different deformation conditions on peak stress of Zr-4 alloy: (a) $0.001\text{--}0.1\text{ s}^{-1}$ and (b) $1\text{--}10\text{ s}^{-1}$

值应力对变形温度比较敏感。这是因为变形温度越高，材料的热激活能增加，加速了晶界迁移率，有利于再结晶的发生并降低滑移阻力，加强了软化效应，从而使峰值应力下降^[18]。综上所述，材料在热变形中可以通过降低应变速率或提高变形温度来降低峰值应力。

2.2 Zr-4 合金物理本构模型

2.2.1 物理本构模型的构建

Zr-4 合金的物理本构模型考虑了变形温度变化对材料的自扩散系数(D)和 Young's 模量(E)的影响，该模型不仅反映了流变应力与应变速率和变形温度的关系，还体现了合金的物理特性^[10]。具体物理本构模型如下：

$$D(T) = D_0 \exp\left(-\frac{Q_{sd}}{RT}\right) \quad (1)$$

$$E(T) = E_0 \left[1 + \frac{T_m}{G_0} \cdot \frac{dG}{dT} \cdot \frac{(T - 300)}{T_m} \right] \quad (2)$$

$$\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} = B_1 \left(\frac{\sigma}{E(T)} \right)^n \quad (3)$$

$$\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} = B_2 \left(\frac{\beta\sigma}{E(T)} \right) \quad (4)$$

$$\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} = B \left[\sinh \left(\frac{\alpha\sigma}{E(T)} \right) \right]^n \quad (5)$$

式中: $D(T)$ 表示材料的自扩散系数和变形温度之间的函数关系, D_0 为自扩散系数; Q_{sd} 表示材料的自扩散激活能(J/mol); T 是变形温度(K); R 表示气体常数(J/(mol·K))。 $E(T)$ 表示材料的 Young's 模量和变形温度之间的函数关系, E_0 和 G_0 分别表示材料在 300 K 时 Young's 模量和剪切模量(MPa); T_m 为材料的熔点(K); 式中其余参数 B 、 B_1 、 B_2 、 n 、 n_1 、 α 和 β 均为材料常数, 其中 $\alpha=\beta/n_1$ 。 n 为材料的蠕变常数, 通常为计算简便会将其设为定值 5, 但同时会降低物理本构模型的预测精度^[19]。此处充分考虑了变形温度、应变速率等工艺参数对其值的影响, 将 n 设为材料常数。

通过文献[20-22]获得 Zr-4 合金的相关材料参数, 如表 2 所示。

分别对式(3)和(4)等号两边取对数, 并求导得到 n_1 和 β 的表达式, 如式(6)和(7)所示:

$$n_1 = d \ln \left(\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} \right) / d \ln \left(\frac{\sigma}{E(T)} \right) \quad (6)$$

$$\beta = d \ln \left(\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} \right) / d \left(\frac{\sigma}{E(T)} \right) \quad (7)$$

分别建立 $\ln[\dot{\varepsilon}/D(T)]-\ln[\sigma/E(T)]$ 和 $\ln[\dot{\varepsilon}/D(T)]-\sigma/E(T)$ 之间的关系, 此处以真应变 0.3 为例, 代入真应力-应变实验数据, 并进行一元线性拟合, 如图 3a 和 3b 所示,

表 2 Zr-4 合金的相关材料参数

Table 2 Correlation material parameters of Zr-4 alloy

$D_0/\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	$Q_{sd}/\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$	G_0/MPa	E_0/MPa	T_m/K	$\frac{T_m}{G_0} \frac{dG}{dT}$
6.9×10^{-4}	47300	8.7×10^4	8.62×10^4	1852	-1.2

得 $n_1=6.17$, $\beta=3478.7$, 故 $\alpha=563.8$ 。对式(5)两边取对数并求导得 n 和 $\ln B$ 的求解式, 如式(8)所示:

$$\ln \left(\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} \right) = n \ln \sinh \left(\frac{\alpha\sigma}{E(T)} \right) + \ln B \quad (8)$$

继续代入实验数据, 建立 $\ln[\dot{\varepsilon}/D(T)]-\ln[\sinh(\alpha\sigma/E(T))]$ 之间的关系, 通过一元线性拟合后得到直线斜率 n 和截距 $\ln B$ 分别为 5.65 和 60.22, 如图 3c 所示。

根据上述方程式所求的材料参数, 并结合式(1)和(2), 整理后得到 Zr-4 合金在真应变为 0.3 条件下的物理本构方程, 即:

$$\left(\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)} \right) = e^{60.22} \left[\sinh \left(\frac{563.8\sigma}{E(T)} \right) \right]^{5.65} \quad (9)$$

为了进一步验证该物理本构模型预测的精度, 故将真应变为 0.3 所对应的实验数据代入到该物理本构方程中, 即可得到预测应力值。通过相关系数 R 值和平均相对误差 ARE 来判断所建物理本构方程的精确水平。 R 和 ARE 的公式如下:

$$R = \frac{\sum_{i=1}^N (C_i - \bar{C})(T_i - \bar{T})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (C_i - \bar{C})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^N (T_i - \bar{T})^2}} \quad (10)$$

$$ARE = \frac{\sum_{i=1}^N \left| \frac{C_i - \bar{C}}{C_i} \right| \times 100\%}{N} \quad (11)$$

式中: C 是实验值, T 为预测值, N 为样本数量。图 4 为合金在真应变为 0.3 条件下流变应力的实验值与预测值相关性分析。从图 4 可得: 该模型的相关系数 R 为 0.986, 平均相对误差为 6.12%, 表明该物理本构方程能够较为准确地预测真应变为 0.3 时的流变应力。

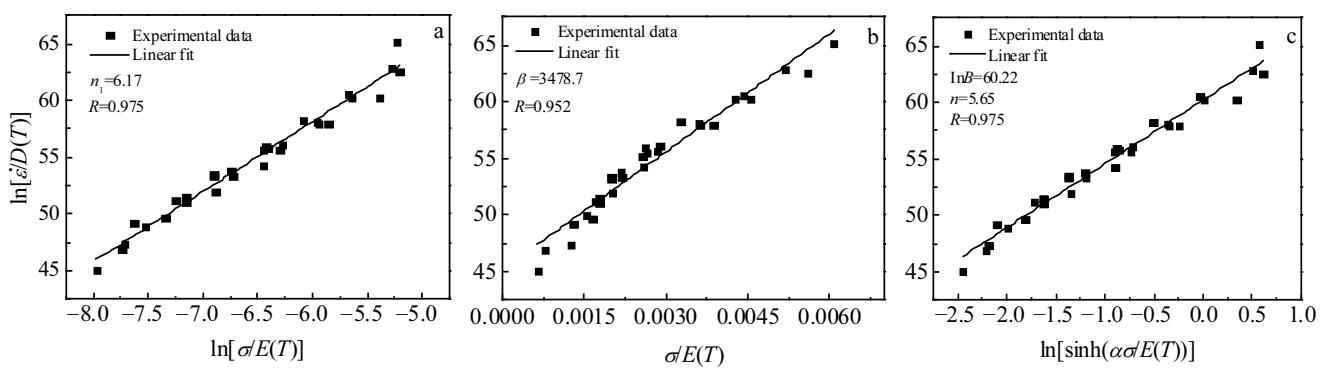


图 3 Zr-4 合金参数 n_1 、 β 和 n 值的线性拟合

Fig.3 Linear relationship fitting of parameters of n_1 , β and n of Zr-4 alloy: (a) $\ln[\dot{\varepsilon}/D(T)]-\ln[\sigma/E(T)]$; (b) $\ln[\dot{\varepsilon}/D(T)]-\sigma/E(T)$; (c) $\ln[\dot{\varepsilon}/D(T)]-\ln[\sinh(\alpha\sigma/E(T))]$

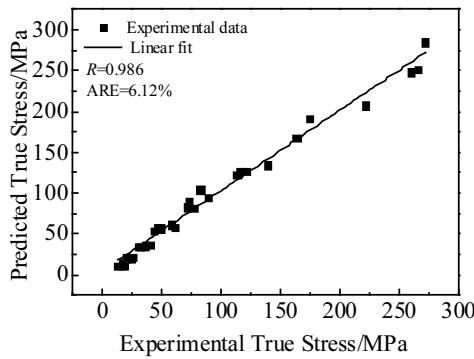


图 4 Zr-4 合金在真应变为 0.3 下流变应力实验值与预测值相关性分析

Fig.4 Correlation analysis between experimental and predicted flow stress of Zr-4 alloy under true strain $\varepsilon=0.3$

2.2.2 基于应变耦合物理本构模型的构建

目前传统的物理本构模型并没有考虑到应变量对其流变应力的影响，故在本构模型基础上加入应变补偿。本实验的压下率为 70%，对应的真应变约为 1.2，采用上述方法，分别计算 ε 在 0.05~1.2，间隔在 0.05 下的 α 、 n 和 $\ln B$ 数值。为了提高模型的精度，利用

MATLAB 软件对各个真应变下的材料参数值分别进行 4~10 次非线性多项式拟合，拟合结果发现 6 次非线性拟合的精度最高，故决定采用 6 次多项式来表达真应变与各个材料参数值之间的非线性关系。材料参数 α 、 n 和 $\ln B$ 与真应变之间的拟合关系曲线如图 5 所示，相关函数表达式如下式所示：

$$\begin{cases} \alpha(\varepsilon) = A_0 - A_1\varepsilon + A_2\varepsilon^2 - A_3\varepsilon^3 + A_4\varepsilon^4 - A_5\varepsilon^5 + A_6\varepsilon^6 \\ n(\varepsilon) = B_0 + B_1\varepsilon - B_2\varepsilon^2 - B_3\varepsilon^3 - B_4\varepsilon^4 + B_5\varepsilon^5 - B_6\varepsilon^6 \\ \ln B(\varepsilon) = C_0 + C_1\varepsilon - C_2\varepsilon^2 - C_3\varepsilon^3 - C_4\varepsilon^4 + C_5\varepsilon^5 - C_6\varepsilon^6 \end{cases} \quad (12)$$

相对应的系数如表 3 所示。

综上所得：将通过多元非线性拟合得到的多项式（12）代入到式（5）中，经过整理变换得到 Zr-4 合金在变形温度为 750~1000 °C，应变速率 0.001~10 s⁻¹ 和最大压下率 70% 条件下基于应变耦合的物理本构模型，表达式如下：

$$\sigma = \frac{E(T)}{\alpha\varepsilon} \ln \left\{ \left(\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)B(\varepsilon)} \right)^{1/n(\varepsilon)} + \left[\left(\frac{\dot{\varepsilon}}{D(T)B(\varepsilon)} \right)^{2/n(\varepsilon)} + 1 \right]^{1/2} \right\} \quad (13)$$

2.2.3 本构模型的验证

为了验证该应变耦合的物理本构模型，将各个材料参数表达式（12）分别代入式（13），即可得到所需

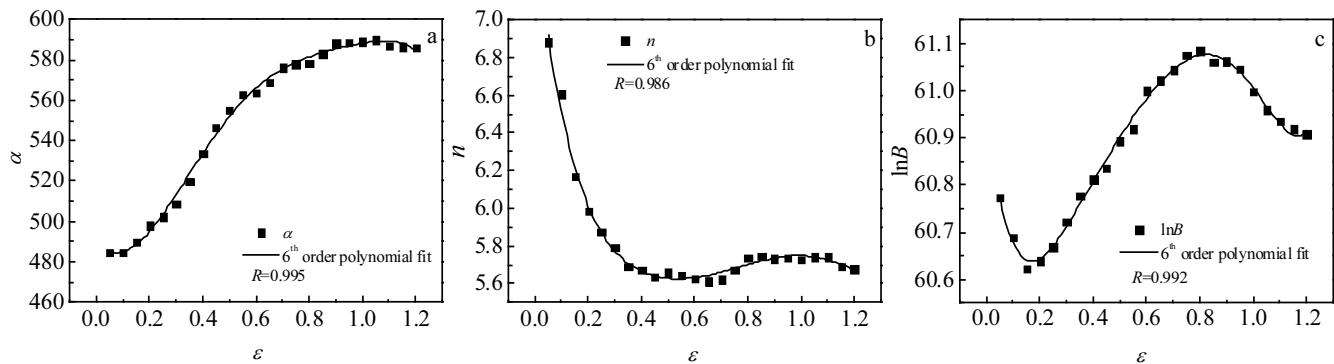


图 5 材料参数 α 、 n 和 $\ln B$ 与真应变之间关系的 6 阶函数拟合曲线

Fig.5 Fitting curves of 6th order function for the relationship between material parameters of α (a), n (b), $\ln B$ (c) and true strain ε

表 3 Zr-4 合金材料参数的 6 阶多项式的拟合系数

Table 3 Fitting coefficients of 6th order polynomial of material parameters of Zr-4 alloy

α	n	$\ln B$			
A_0	491.222 9	B_0	7.472 9	C_0	60.961 5
A_1	-173.448 6	B_1	-12.924 3	C_1	-4.857 6
A_2	1252.091 3	B_2	39.242 6	C_2	25.089 2
A_3	-1520.878 5	B_3	-67.923 4	C_3	-55.866 1
A_4	46.346 6	B_4	70.009 5	C_4	68.829 8
A_5	887.609 98	B_5	-38.921 5	C_5	-45.112 4
A_6	-394.626 4	B_6	8.791 3	C_6	11.962 4

的预测流变应力值。图 6 为 Zr-4 合金在 750~1000 °C 时基于应变耦合物理本构模型的流变应力预测值与实验值对比情况。可以看出，通过应变耦合建立的物理本构模型得到的预测值与实验值能够良好吻合。从图 6 还可以看出，在低应变速率（0.001~1 s⁻¹）时，流变应力实验值与预测数据基本一致；而当应变速率大于 1 s⁻¹ 时，物理本构模型预测存在一定的偏差。由于材料发生动态失效或者局部流变而引起的连续的小范围的应力震荡，表现出流变应力不连续屈服现象^[23]，故

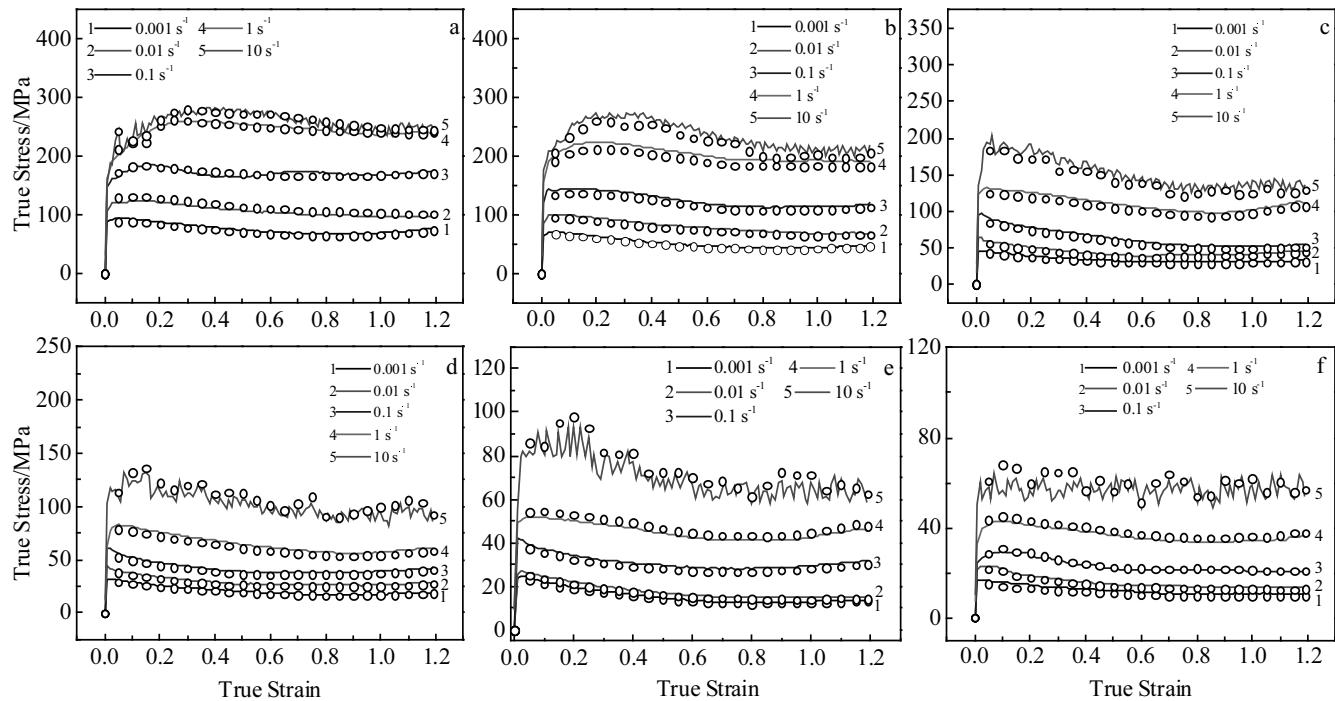


图 6 不同变形温度下 Zr-4 合金流变应力基于应变耦合物理本构模型的预测值与实验值对比

Fig.6 Comparison of the experimental and predicted values of flow stress from physical constitutive model based on strain compensation of Zr-4 alloy at different deformation temperatures: (a) 750 °C, (b) 800 °C, (c) 850 °C, (d) 900 °C, (e) 950 °C, and (f) 1000 °C

此时物理本构模型预测精度较低。

继续通过相关系数 R 和平均相对误差 ARE 值来判断所建应变补偿型本构方程的精确水平, 具体计算公式见式(10)和(11), 结果如图 7 所示。相关系数 R 为 0.986, 流变应力预测值偏差在 10% 以内的数据点占 93.2%, 平均相对误差为 6.3%。进一步证明, 采用基于应变耦合物理本构模型建立的 Zr-4 合金本构模型具有很高的预测精度。

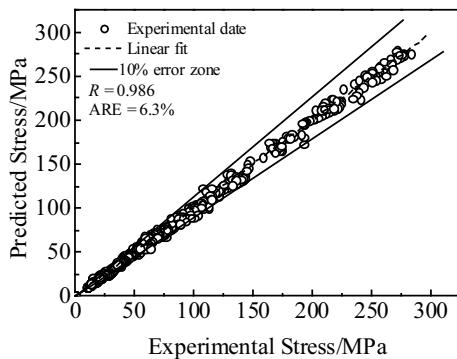


图 7 Zr-4 合金流变应力实验值与预测值相关性分析

Fig.7 Correlation analysis between experimental and predicted flow stress of Zr-4 alloy

3 结 论

1) Zr-4 合金的峰值应力对变形温度和应变速率比较敏感, 随变形温度的降低和应变速率的增加而增大。
2) 考虑变形温度对材料的自扩散系数和 Young's 模量的影响, 构建基于应变耦合的 Zr-4 合金物理本构模型, 其流变应力预测值的相关系数 R 为 0.986, 偏差在 10% 以内的数据点占 93.2%, 平均相对误差为 6.3%。

参考文献 References

- [1] Zhao Wenjin(赵文金), Zhou Bangxin(周邦新), Miao Zhi(苗志) et al. *Atomic Energy Science and Technology*(原子能科学与技术)[J], 2005, 39(S1): 3
- [2] Murty K L, Charit I. *Progress in Nuclear Energy*[J], 2006, 48(4): 325
- [3] Zhang Yanwei(张晏玮), Wang Rongshan(王荣山), Bai Guanghai(柏广海) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2012, 41(S2): 357
- [4] Peng Qian(彭倩), Shen Baoluo(沈保罗). *Chinese Journal of Rare Metals*(稀有金属)[J], 2005, 29(6): 903
- [5] Zhou Jun(周军), Li Zhongkui(李中奎). *Materials China*(中

- 国材料进展)[J], 2014, 33(S1): 554
- [6] Bai Guanghai(柏广海), Chen Zhilin(陈志林), Zhang Yanwei(张晏玮) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(7): 2035
- [7] Wang Ruining(王蕊宁), Xi Zhengping(奚正平), Zhao Yongqing(赵永庆) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2007, 36(5): 808
- [8] Perlovich Y, Isaenkova M, Grekhov M et al. *Materials Science Forum*[C]. Zürich: Trans Tech Publications, 2008: 338
- [9] Chen Yizhe(陈益哲), Pang Yuhua(庞玉华), Wang Jianguo(王建国) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2019, 48(11): 3577
- [10] Cabrera J M, Omar AI A, Prado J M et al. *Metallurgical and Materials Transactions A*[J], 1997, 28(11): 2233
- [11] Wang S, Luo J R, Hou L G et al. *Materials and Design*[J], 2016, 107: 277
- [12] Wei H L, Liu G Q, Zhang M H. *Materials Science and Engineering A*[J], 2014, 602: 127
- [13] Zhou Feng(周峰), Wang Kelu(王克鲁), Lu Shiqiang(鲁世强) et al. *Transactions of Materials and Heat Treatment*(材料热处理学报)[J], 2018, 39(12): 109
- [14] Zeng Qinghui(曾庆辉), Luan Baifeng(栾佰峰), Chapuis Adrien et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2019, 48(8): 2393
- [15] Lin G Q. *Advanced Materials Research*[J], 2012, 578(12): 202
- [16] Luan Baifeng, Xue Jiaoqiao, Chai Linjiang et al. *Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2013, 42(12): 2636
- [17] Guo Yakun(郭亚昆), Shuai Maobing(帅茂兵), Zou Dongli(邹东利) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(6): 1584
- [18] Zou Dongli(邹东利), Luan Baifeng(栾佰峰), Xiao Dongping(肖东平). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2014, 43(8): 1897
- [19] Wei Hailian(魏海莲), Liu Guoquan(刘国权), Xiao Xiang(肖翔) et al. *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2013, 49(6): 731
- [20] Sterman L, Kailzis F. *Zr*[M]. Beijing: China Industry Press, 1965
- [21] China Non-Ferrous Metals Industry Association(中国有色金属工业协会). *Zr and Hf of China*(中国锆、铪)[M]. Beijing: Metallurgical Industry Press, 2017
- [22] He Weijun(何维均), Yuan Gaihuan(袁改焕), Luan Baifeng(栾佰峰) et al. *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2018, 47(1): 823
- [23] Wang Ke, Li Miaoquan. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2016, 26(6): 1583

Hot Deformation Behavior and Strain Compensation Physical Constitutive Model of Zr-4 Alloy

Feng Rui, Wang Kelu, Lu Shiqiang, Li Xin, Zhou Xuan, Zhong Mingjun

(School of Aerospace Manufacturing Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, China)

Abstract: The isothermal constant strain rate compression experiment was carried out on Zr-4 alloy samples by Gleeble-3500 thermal simulator. The thermal deformation behavior was analyzed, and the physical constitutive model of Zr-4 alloy based on strain compensation was established by combining the influence of deformation temperature on Young's modulus and self-diffusion coefficient. The results show that the peak stress of the alloy is sensitive to the deformation temperature and strain rate, and the peak stress increases with the increase of the strain rate or the decrease of the deformation temperature. The constructed physical constitutive model based on strain compensation can better predict the flow stress of the alloy in the thermal deformation process, and its correlation coefficient R is 0.986. The data points with the predicted value deviation less than 10% account for 93.2%, and the average relative error is 6.3%.

Key words: Zr-4 alloy; hot deformation behavior; strain compensation; physical constitutive model

Corresponding author: Wang Kelu, Ph. D., Professor, School of Aerospace Manufacturing Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, P. R. China, E-mail: wangkelu@126.com