

陶瓷 UO_2 孔隙率与孔隙分布的定量测量

黄志锋, 褚胜林, 廖寄乔, 普建强, 郑灵芝

(中南大学 粉末冶金国家重点实验室, 湖南 长沙, 410083)

摘要: 借助大型金相显微镜, 对陶瓷 UO_2 的孔隙率与孔隙分布金相定量测量进行研究。研究表明: 利用组合物镜(100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times)测量陶瓷 UO_2 的孔隙率与孔隙分布比利用单个物镜(20 \times)测量所得结果精度高, 分布曲线更光滑; 利用低倍物镜(20 \times , 10 \times , 5 \times)摄取的金相图像测量其孔隙率与孔隙分布时, 采取图像背底固定法较好, 利用高倍物镜(100 \times , 50 \times)摄取的金相图像测量其孔隙率与孔隙分布时, 采取峰值法较好; 测量视场数由孔隙测量波动程度与要求达到的测量精度所决定, 当测量精度要求达到 3%, 置信度为 95%时, 需测量的视场数为 300~330 个。

关键词: 陶瓷 UO_2 ; 孔隙率; 孔隙分布; 定量测量

中图分类号: TF125.42

文献标识码: A

文章编号: 1672-7207(2007)03-0409-05

Quantitative measurement of ceramic uranium dioxide porosity and pore distribution

HUANG Zhi-feng, CHU Sheng-lin, LIAO Ji-qiao, PU Jian-qiang, ZHEN Ling-zhi

(State Key Laboratory of Powder Metallurgy, Central South University, Changsha 410083, China)

Abstract: The method of quantitative measurement of ceramic uranium dioxide porosity and pore distribution was discussed. The results show that the measured value of porosity and pore distribution with four object lens(100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times) is more accurate and the curve is more smooth than those with single object lens(20 \times). The method of image background grey value is better than the peaking value method for the metallograph grabbed by the low power lens(20 \times , 10 \times , 5 \times). The peaking value method is better than the method of image background grey value for the metallograph grabbed by the high power lens(100 \times , 50 \times). The number of measured field depends on the fluctuation of porosity measurement and the measured precision. When the confidence is 95% and the measured precision is 3%, the number of measured field is 300-330.

Key words: ceramic uranium dioxide; porosity; pore distribution; quantitative measurement

UO_2 是铀的一种难熔化合物。通常采用化工方法将用作动力燃料的 UO_2 制成粉末, 然后用粉末冶金方法先压制成坯块, 再在高温保护性气氛中烧结成具有一定尺寸、形状、强度和高密度的烧结块(也称芯块), 习惯上称它为陶瓷 UO_2 。在众多核燃料中, UO_2 燃料具有极其重要的作用, 几乎所有的水堆(轻水堆、重水堆)燃料都是陶瓷 UO_2 ^[1]。陶瓷 UO_2 具有以下优点: 熔点高, 达(2 868 \pm 15) $^{\circ}\text{C}$, 高温稳定性强; 抗辐照, 包

容裂变气体的能力强; 抗腐蚀, 特别是抗水腐蚀性强; 辐照下尺寸稳定; 与包壳材料具有优良的相容性等^[2-4]。陶瓷 UO_2 孔隙率与孔隙分布描述其微观结构最基本的特征, 是控制其尺寸稳定性的重要参数, 直接影响它在堆内的运行性能。因此, 准确测量陶瓷 UO_2 孔隙率与孔隙分布对于其微观结构的控制和堆内的安全运行具有十分重要的意义。研究表明, UO_2 芯块辐照密实化主要由尺寸小于 5 μm 的气孔所致, 因此,

收稿日期: 2006-11-08

作者简介: 黄志锋(1972-), 男, 湖南汨罗人, 工程师, 硕士, 从事金相图像定量测量的研究

通讯作者: 黄志锋, 男, 硕士; 电话: 0731-8876204; E-mail: huang_zhifeng@126.com

在确定 UO_2 芯块气孔分布测量方法时, 将优先保证小气孔($1\sim 10\ \mu\text{m}$)测量的准确性。 UO_2 芯块气孔分布最初是用手工作法测定或借助一些计数装置进行半定量测定的, 如图片重量法、ZPSA(Zeiss particle size analyser)法等^[5]。随着数字图像技术的不断发展, 图像分析仪测量具有速度快、工作量小、测量精度高等优点。事实上, 对于小气孔数量极多的 UO_2 芯块, 图像分析法是定量测定气孔分布的惟一方法。20 世纪 70 年代初, 国外一些学者运用小型图像分析仪测定 UO_2 芯块的气孔分布, 但从研究结果^[5-7]来看, 目前还没有形成一个较为完善的气孔分布测定方法, 这主要是由于存在以下问题:

- a. 准确测量范围小, 这主要是测量倍数单一所致。
- b. 测量误差较大, 为 20%~30%。
- c. 测量条件和参数多依赖人眼判断, 无法实现方法标准化。

针对以上问题, 本文作者采用金相显微镜在不同放大倍数下测量不同尺寸范围的气孔, 准确地确定测量参数及制样条件, 保证气孔分布测量结果的准确性和再现性。

1 实 验

1.1 样品制备

陶瓷 UO_2 孔隙在制备过程中可能产生扩张与塌陷, 改变孔隙在截面上的原始状态, 带来测量误差。

a. 取样。每批陶瓷 UO_2 , 一般选取一个有代表性的样品, 测量其孔隙率与孔隙分布^[8]。

b. 真空树脂浸渍镶样。为防止研磨与抛光过程中孔隙的扩张与塌陷, 将样品放入容器中, 在真空状态下将按一定比例配好的环氧树脂(m (环氧树脂): m (邻苯二甲酸二丁酯): m (乙二胺)=12:3:1)渗入陶瓷 UO_2 孔隙中^[9], 待树脂凝固后进行研磨与抛光。

c. 研磨与抛光。采用全自动磨样机研磨与抛光。首先采用粒径为 200 和 40 μm 的金刚石磨盘粗磨, 每道粗磨时间为 3~5 min。抛光采用粒径为 14, 7, 3, 1 和 0.5 μm 的金刚石悬浮液在多毛织物上进行, 每道工序抛光 3~5 min^[10]。在金相显微镜下放大 100 倍观察, 样品表面光亮、平整、无划痕, 孔隙无明显的变形与塌陷时即可。

1.2 测量步骤

a. 根据测量孔隙大小选择 100 \times , 50 \times , 20 \times 和

5 \times 4 个物镜测量。

b. 根据物镜大小选择对应的像素点校准标尺。

c. 选择孔隙面积(S)与孔隙等效圆直径(d)作为测量特征参数。

d. 调节金相显微镜, 使图像清晰, 同时图像亮度与对比度满足图像仪要求。

e. 摄像头(CCD)摄取图像, 使图像背底灰度在某值附近。

f. 设置图像二值分割值, 使分割出的孔隙与原始孔隙相比变化最小。

g. 测量孔隙面积(S)和孔隙等效圆直径(d), 并存入数据库。

2 结果与讨论

2.1 物镜组合测量

陶瓷 UO_2 孔隙直径范围在 0.2~200 μm 之间, 采用单个物镜对整个范围内的孔隙无法准确测量。采用 4 个物镜(100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times)分别测量不同直径范围的孔隙, 测量结束后进行归一化处理。4 个物镜及测量范围如表 1 所示。

表 1 物镜及其测量孔隙范围

Table 1 Object lens and measured scale of pore

物镜	测量孔隙直径范围/ μm
100 \times	0~3
50 \times	3~9
20 \times	9~22
5 \times	>22

采用物镜组合与单个物镜 2 种方法测量总孔隙率为 4.70% 的陶瓷 UO_2 样品的孔隙率与孔隙分布。将孔隙等效圆直径(d)取对数分成 20 级, 统计各级孔隙面积占整个陶瓷 UO_2 截面面积的百分数, 如表 2 所示。采取 4 个物镜(100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times)组合测量和采用单个物镜(20 \times)测量, 单次测量视场数均为 330 个, 重复测量 6 次, 取其平均结果。根据表 2 所示测量结果, 以孔隙等效圆直径为横坐标, 孔隙面积分数为纵坐标, 作直方分布图, 如图 1 和图 2 所示。

可见, 采用物镜 (100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times)组合测量陶瓷 UO_2 孔隙直径分布, 其孔隙直径分布呈均匀的正态分布, 测量的孔隙率为 4.86%, 与实际孔隙率 4.70% 非常接近, 其相对误差为 -3.4%~3.4%。采取单个物镜(20 \times)测量陶瓷 UO_2 孔隙直径分布, 其孔隙直

表2 各级等效圆直径(d)内的孔隙面积分数

Table 2 Area fraction of pore in equivalent diameter with all levels

等效圆直径 d/ μm	孔隙面积分数/%	
	4个物镜组合测量	单个物镜测量
0.200 0~0.282 5 (d_1)	0.013 1	0.010 8
0.282 5~0.399 0 (d_2)	0.030 6	0.036 6
0.399 0~0.563 6 (d_3)	0.084 8	0.095 2
0.563 6~0.796 2 (d_4)	0.219 0	0.254 6
0.796 2~1.120 0 (d_5)	0.490 0	0.479 3
1.120 0~1.588 6 (d_6)	0.618 1	0.761 9
1.588 6~2.244 0 (d_7)	0.807 4	0.812 5
2.244 0~3.170 0 (d_8)	0.608 0	0.733 6
3.170 0~4.480 0 (d_9)	0.550 1	0.411 4
4.480 0~6.320 0 (d_{10})	0.330 6	0.261 3
6.320 0~8.930 0 (d_{11})	0.277 2	0.138 5
8.930 0~12.620 0 (d_{12})	0.242 0	0.207 6
12.620 0~17.830 0 (d_{13})	0.203 0	0.116 2
17.830 0~25.180 0 (d_{14})	0.107 6	0.149 0
25.180 0~35.570 0 (d_{15})	0.069 6	0.169 7
35.570 0~50.240 0 (d_{16})	0.052 5	0.120 2
50.240 0~70.960 0 (d_{17})	0.041 2	0.094 3
70.960 0~100.240 0 (d_{18})	0.043 7	0.057 3
100.240 0~141.590 0 (d_{19})	0.033 4	0.047 6
141.590 0~200.000 0 (d_{20})	0.044 6	0.024 5

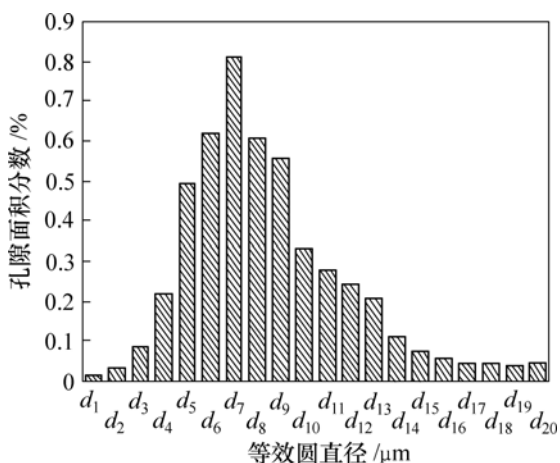


图1 4个物镜(100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times)组合测量孔隙分布直方图

Fig.1 Pore distribution diagram with four object lens (100 \times , 50 \times , 20 \times , 5 \times) measured

径呈正态分布, 但曲线不规则, 且测量的孔隙率为 4.98%, 与实际孔隙率 4.70%相差较大, 其相对误差为 -5.96%~5.96%。

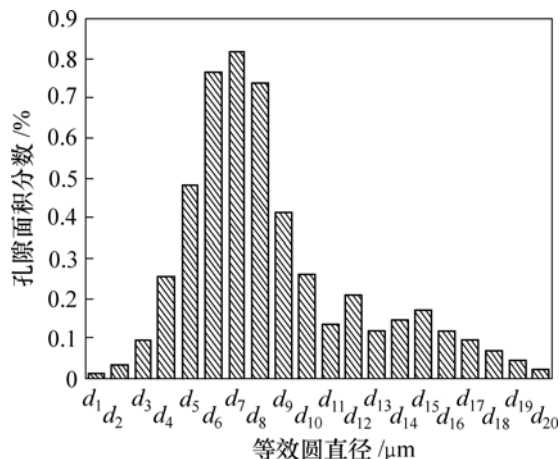


图2 单个物镜(20 \times)测量孔隙分布直方图

Fig.2 Pore distribution diagram with single object lens (20 \times) measured

2.2 图像二值分割值的取值

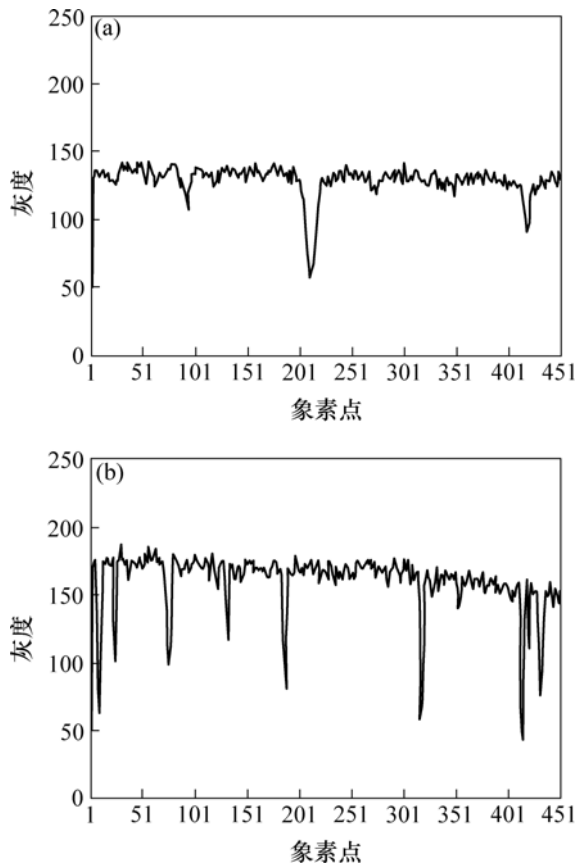
图像二值分割值的取值取决于图像灰度分布状态。用徕卡 MeF3A 金相显微镜与 Q550 图像仪测量陶瓷 UO₂ 金相图像的灰度、孔隙率与孔隙直径分布。陶瓷 UO₂ 孔隙率与孔隙直径分布的测量可用峰值法与背底固定法。峰值法是先测量图像中孔隙的灰度, 如图 3 所示, 选取孔隙灰度的中间值为二值分割值, 测量其孔隙率与孔隙直径分布。固定图像背底法是摄取图像时, 调整好显微镜的灯光、光栅等参数, 在孔隙非常清楚显现情况下, 使图像背底灰度在某一值附近, 选取图像背底灰度为二值分割值, 测量孔隙率与孔隙直径分布。

分别用峰值法和背底固定法测量 20 \times 物镜摄取的金相图像(图 4)的孔隙率如图 5 所示。从图 5 可以看出, 图像二值分割后, 测量的孔隙与原图像孔隙(图 4)非常吻合, 孔隙率测量结果均为 3.9%。用峰值法和背底固定法测量 100 \times 物镜摄取的金相图像(图 6)的孔隙率如图 7 所示。采用峰值法二值分割后, 待测量孔隙(图 7(a))与原图像(图 6)孔隙吻合较好, 孔隙率测量结果为 6.3%; 用背底固定法测量时, 由于受高倍物镜本身性能及显微镜灯光等因素的影响, 背底灰度很不均匀, 导致二值分割后待测量孔隙直径(图 7(b))与原图像(图 6)孔隙直径不太吻合, 孔隙率测量结果为 21.8%, 明显大于实际的孔隙率。这表明, 对高倍物镜(100 \times , 50 \times)摄取的金相图像采用峰值法测量其孔隙率与孔隙直径分布优于用背底固定法。对低倍物镜(20 \times , 10 \times , 5 \times)摄取的金相图像采用峰值法与图像背底固定法测量其孔隙率与孔隙直径分布都能得到较好的测量结果, 但由于图像背底固定法能调节相同的

背底灰度参数, 选取固定的二值分割值, 保证测量结果的重复性, 且测量简单、快速。因此, 低倍物镜摄取的金相图像采用图像背底固定法测量其孔隙率与孔隙直径分布优于用峰值法所得结果。

2.3 测量视场个数

陶瓷 UO_2 截面孔隙在微观上是不均匀的, 必须选一定数量的视场进行测量, 才能满足测量精度的要求。测量视场个数的确定, 取决于孔隙测量的波动程度 $\sigma(\bar{x})$ 和要求的测量精度 $\varepsilon^{[11]}$ 。



(a) 物镜(20×); (b) 物镜(100×)

图3 陶瓷 UO_2 孔隙照片灰度测量图

Fig.3 Grey-scale pictures of ceramic uranium dioxide

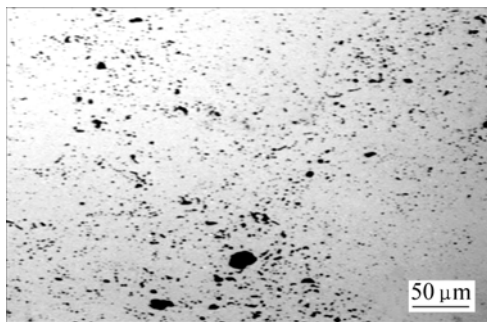
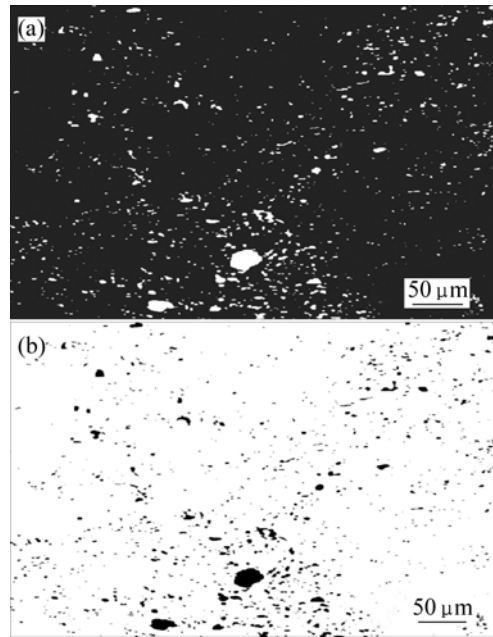


图4 用物镜(20×)摄取的陶瓷 UO_2 孔隙照片

Fig.4 Picture of ceramic uranium dioxide pore grabbed by object lens (20×)



(a) 峰值法测量, 孔隙率为 3.9%;

(b) 背底固定法测量, 孔隙率为 3.9%

图5 采用不同方法测量的陶瓷 UO_2 孔隙照片(20×)

Fig.5 Pictures of ceramic uranium dioxide pore with different measured methods (20×)

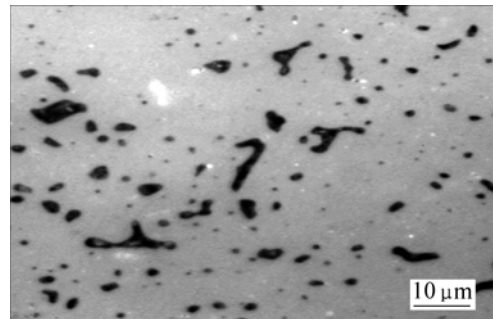


图6 用物镜(100×)摄取的陶瓷 UO_2 孔隙照片

Fig.6 Picture of ceramic uranium dioxide pore grabbed by object lens (100×)

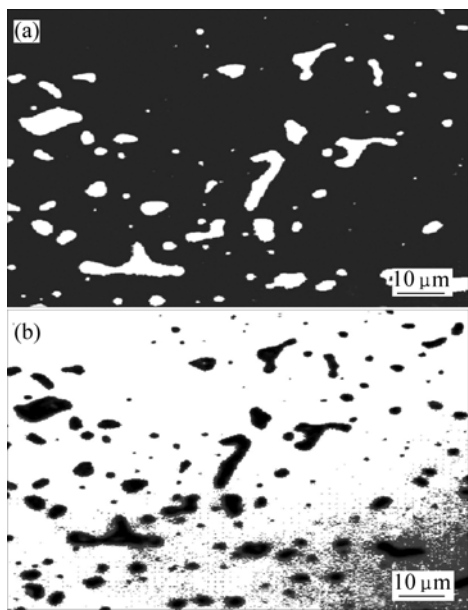
$$n = \left(\frac{k\sigma(\bar{x})}{\varepsilon \bar{x}} \right)^2 \tag{1}$$

式中: n 为视场数; $\sigma(\bar{x})$ 为标准偏差; ε 为测量精度; k 为置信度; \bar{x} 为孔隙直径测量的平均结果。

$$\sigma(\bar{x}) = \sqrt{\frac{\sum (x_i - \bar{x})^2}{n(n-1)}} \tag{2}$$

式中: x_i 为单次孔隙直径测量值。

用徕卡 MeF3A 金相显微镜与 Q550 图像仪测量陶瓷 UO_2 的孔隙率, 利用要求测量的精度 ε 和置信度 k , 代入式(1)和式(2)计算, 可用次数不多的测量值(见



(a) 峰值法测量, 孔隙率为 6.3%;
(b) 背底固定法测量, 孔隙率为 21.8%

图7 采用不同方法测量的陶瓷 UO₂ 孔隙照片(100×)

Fig.7 Pictures of ceramic uranium dioxide pore with different measured methods (100×)

表3)估算需测量的视场数。当测量精度要求达到3%, 置信度为95%时, 用表3中的数据代入式(1)和式(2)计算, 需测量的视场数为300~330个。用组合物镜(100×, 50×, 20×, 5×)测量时(各物镜测量的视场数见表4), 330个视场测量的数据验证, 能达到3%的测量精度和95%置信度, 测量视场数与估算数相一致。

表3 6次孔隙测量初始值

Table 3 Six times pore measured original value

测量次数	1	2	3	4	5	6	Σ
孔隙测量值/%	3.30	4.77	5.67	4.75	5.58	2.77	26.84

表4 物镜和测量视场个数

Table 4 Object lens and number of measured field

物镜	测量视场数/个
100×	100
50×	100
20×	100
5×	30

3 结论

a. 组合物镜(100×, 50×, 20×, 5×)测量陶瓷 UO₂ 孔隙率与孔隙直径分布比单个物镜(20×)测量的

精度更高, 分布曲线更光滑。

b. 测量陶瓷 UO₂ 孔隙率与孔隙直径分布, 对低倍物镜(20×, 10×, 5×)摄取的图像, 采取固定背底法分析较好; 对高倍物镜(100×, 50×)摄取的图像, 采取峰值法较好。

c. 测量视场数由孔隙测量波动程度与要求达到的测量精度所决定, 当要求达到3%的测量精度且置信度为95%时, 需测量的视场数为300~330个。

参考文献:

- [1] 伍志明. 二氧化铀核燃料的粉末冶金技术[J]. 粉末冶金技术, 1996, 14(1): 63-68.
WU Zhi-ming. P/M technology of uranium dioxide nuclear fuel[J]. Powder Metallurgy Technology, 1996, 14(1): 63-68.
- [2] 高家诚, 李锐, 钟凤伟. 二氧化铀陶瓷材料块工艺研究进展[J]. 功能材料, 2006, 37(6): 849-852.
GAO Jia-cheng, LI Rui, ZHONG Feng-wei. Progress in processes of uranium dioxides pellets[J]. Functional Materials, 2006, 37(6): 849-852.
- [3] 蔡文仕, 舒保华. 陶瓷二氧化铀制备[M]. 北京: 原子能工业出版社, 1984.
CAI Wen-shi, SHU Bao-hua. Fabrication of ceramic uranium dioxide[M]. Beijing: Atomic Energy Industry Press, 1984.
- [4] 伍志明. 二氧化铀粉末冶金工艺学[M]. 北京: 中国核总工业总公司出版社, 1992.
WU Zhi-ming. Uranium dioxide powder metallurgic technology[M]. Beijing: Chinese Nuclear Corporation Press, 1992.
- [5] AREA-M3084, An exercise to establish optimum procedures for the characteristic of porosity in UO₂ fuel pellets[S].
- [6] Allen T. Particle size measurement[M]. 3rd ed. London: Chapman and Hall, 1981.
- [7] Goebelbecker J. Quantitative image analysis of unirradiated breeder-reactor fuel[J]. Journal of Nuclear Materials, 1988, 153: 59-65.
- [8] 郭春琴, 伍志明. 烧结二氧化铀芯块技术条件[M]. 北京: 中国标准出版社, 1998.
GUO Chun-qing, WU Zhi-ming. Specification for sintered uranium dioxide pellets[M]. Beijing: Chinese Standard Press, 1998.
- [9] 黄志锋, 熊翔, 徐慧娟. C/C 复合材料金相制样[J]. 新型碳材料, 2000, 15(4): 71-73.
HUANG Zhi-feng, XIONG Xiang, XU Hui-juan. Preparation of C/C composite sample for metallographic observation[J]. New Carbon Materials, 2000, 15(4): 71-73.
- [10] ISO/TR14321: 1997(E), Sintered metal materials, excluding hard metal metallographic preparation and examination[S].
- [11] 秦国友. 定量金相[M]. 成都: 四川科学技术出版社, 1987.
QING Guo-you. Quantitative metallograph[M]. Chengdu: Sichuan Science Technology Press, 1987.