

УДК 621.039:51-7;621.039:007  
DOI 10.17223/19988621/34/5

**О.А. Бахтеев, А.В. Лысиков, Н.А. Дегтярев, Е.Н. Михеев**

## **РАЗРАБОТКА МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПОР В ОБЪЕМЕ ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТОК ИЗ ДИОКСИДА УРАНА**

Для проведения расчетов в обоснование надежности работы ТВЭЛов необходимо знать как параметры микроструктуры распределяются по объему таблетки. Было предложено использовать штатные методы контроля микроструктуры с последующим пересчетом характеристик в 3D. В данной работе определены требования к исходным данным, описан алгоритм пересчета в 3D, оценены возможные ошибки и пути их минимизации. В статье приведены результаты исследования и пересчета пористости топливных таблеток, изготовленных из различных порошков.

**Ключевые слова:** *ТВЭЛ, топливные таблетки, алгоритм, пористость.*

Согласно требованиям действующей отраслевой инструкции по контролю параметров микроструктуры, контролю подлежат поры с размерами свыше 1 мкм. При этом не менее 80 % пор должно находиться в диапазоне 1–10 мкм. Поры с размером свыше 100 мкм встречаются достаточно редко, а с размером 500 мкм недопустимы. Доля площади шлифа, занимаемая порами, достигает 10–20 %. Поры с размерами менее 1 мкм (субмикронные) можно контролировать с помощью методики, разработанной в ОАО «ВНИИНМ». При этом поры с размером менее 0,15 мкм практически не встречаются, а средний размер составляет 0,4–0,6 мкм. Учитывая, что форма сечений пор близка к кругу (эллипсность – отношение длинной диагонали к короткой – не более 3), можно сделать предположение, что трехмерная форма пор может быть в первом приближении аппроксимирована сферой. Работы по созданию алгоритма пересчета параметров распределений из двух измерений в три проводились с середины 20 века [1–3] и впоследствии были продолжены [4]. Сфера как объект для моделирования может быть описана аналитически и, следовательно, наиболее точно [5]. В то же время, при практическом использовании алгоритма выявляются дополнительные погрешности, вносимые методикой подготовки шлифов и съемки микроструктуры, которые необходимо учитывать в данной работе. К ним относятся ошибки металлографических методик и дефекты типов «купол» и «блюдец», которые описаны ниже. Указанные дефекты приводят к изменению функции формы трехмерного объекта. Под функцией формы трехмерного объекта (ФФ) в данном случае подразумевается кривая распределения сечений по размеру от 3D-формы заданного размера.

### **Разработка алгоритма**

Контроль пор микроструктуры производится согласно действующим методикам контроля параметров микроструктуры при различных увеличениях микроскопа на нетравленных шлифах. Реальные размеры и количество видимых пор зависят от разрешающей способности устройства регистрации изображения. Также

необходимо учитывать, что при изменении увеличения объектива изменяется регистрируемая площадь образца и количество регистрируемых пор, а следовательно, и количество необходимых измерений. Различные диапазоны и количество измерений требуют приведения получаемых распределений пор по размерам к обобщенному распределению, получение которого должно проводиться до преобразования из распределения по сечениям в распределение по объемам.

Из сказанного следует, что для составления обобщенной гистограммы невозможно непосредственно использовать указанный в методиках параметр «количество пор». Требуется ввод параметра «поверхностная плотность пор,  $1/\text{мм}^2$ » (количество пор данного вида на  $1 \text{ мм}^2$  поверхности), который бы учитывал реальные размеры изображения. Кроме того, различные диапазоны измерений пор (0,1–1,0 мкм, 1–10 мкм, 10–100 мкм, свыше 100 мкм) возможно совмещать только при логарифмическом интервале гистограмм распределения. Таким образом, после вычисления поверхностной плотности пор для каждого изображения частные логарифмические гистограммы для отдельных изображений необходимо объединить с учетом доверительных диапазонов измерений и количества измерений. Пример полученной обобщенной гистограммы приведен на рис. 1.

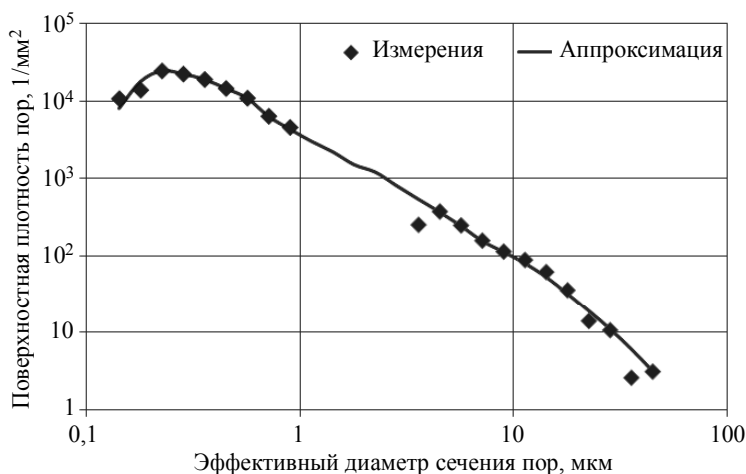


Рис. 1. Обобщенная гистограмма распределения поверхностной плотности пор

Разработанный алгоритм основывается на статистическом подходе, заключающемся в том, что для каждого сечения можно рассчитать вероятность его получения из трехмерной формы рассекаемого объекта, а найденные вероятности будут пропорциональны плотности объектов в объеме образца.

Функция формы (ФФ) может быть задана аналитически для сферы [6] либо подготовлена с помощью моделирования для любой другой формы заданных размеров. В данной работе в качестве аппроксимирующей форму поры объекта на первом этапе была выбрана сфера. Численное решение ФФ зависит от размера аппроксимирующей сферы и интервала гистограммы. Например, на рис. 2 приведена ФФ сферы с диаметром, соответствующим категории гистограммы с логарифмическим интервалом в пределах 39,8–50,1 мкм.

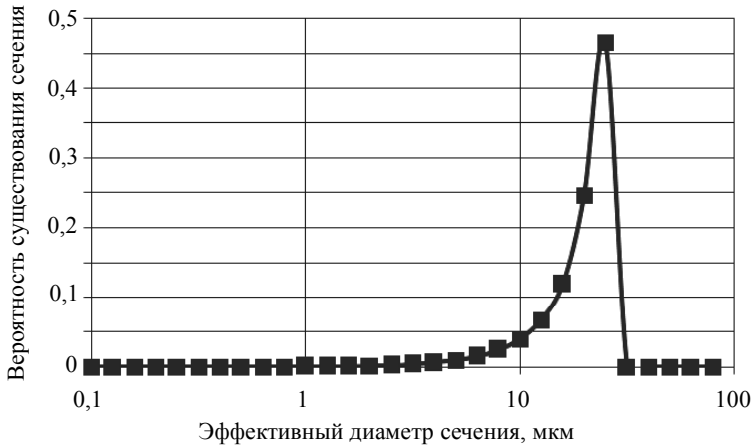


Рис. 2. Функция формы сферы с диаметром, соответствующим категории гистограммы в пределах 39,8–50,1 мкм

Для преобразования исходного распределения сечений в плоскости шлифа  $h(d)$ , где  $d$  – диаметр сечений, в распределение сфер в плоскости шлифа  $h(D)$ , где  $D$  – диаметр сфер, для каждого размера сечения из  $h(d)$  необходимо найти наиболее вероятные 3D-объекты и их количество. Данная задача может быть решена несколькими способами. В частности, можно решать систему алгебраических уравнений или использовать метод Монте-Карло. Однако самым известным и популярным остается метод Салтыкова [3], который является модификацией метода Шейла [2] для логарифмических интервалов. В данной работе этот метод взят за основу. Для преобразования распределения сфер в плоскости шлифа  $h(D)$  в распределение в объеме  $H(D)$  сделано предположение, что количество сфер в объеме обратно пропорционально диаметру сферы. В данной работе использован следующий набор функций:

$$h(D)_i = (h(d)_i - h'(d)_i) / f(D_i, d_i); \quad (1)$$

$$h'(d)_i = \sum_j^n h(D)_j f(D_j, d_i); \quad (2)$$

$$H(D)_i = h(D)_i / D_i, \quad (3)$$

где  $n$  – количество категорий гистограммы;  $D, d$  – диаметры 3D-объектов и сечений, соответственно;  $f(D, d)$  – функция формы 3D-объекта;

Ошибки пересчета складываются из: физических ошибок съемки и регистрации пор; ошибок выбора функции формы; ошибок преобразования распределений.

Под физическими ошибками съемки и регистрации пор подразумевают ограничения, накладываемые регистрирующей аппаратурой микроскопа и процедурой подготовки шлифов.

Первым фактором, влияющим на погрешность, является снижение чувствительности распознавания пор в области малых размеров (на нижней границе диапазона исследования) пор. Вклад этой ошибки определяется металлографически-

ми методиками и составляет 5–20 %. Снизить влияние этого дефекта можно программными средствами при обработке изображений микроструктуры или дополнительных измерениями с более высоким увеличением.

Вторым фактором являются дефекты типов «блюдец» и «купол». Дефект типа «блюдец» заключается в невозможности регистрации сечений находящихся на глубине меньшей  $h$  (рис. 3, *a*) из-за малого угла отклонения поверхности поры от поверхности образца. Вероятность возникновения такого дефекта зависит от соотношения глубины сечения и размера поры  $h/D$ . Данный дефект существенно (до 30 %) влияет на итоговое распределение пор в объеме. Для нивелирования влияния этого дефекта введено условие  $h/D < 0,25$ , при котором все сечения, удовлетворяющие этому условию, отбрасываются.

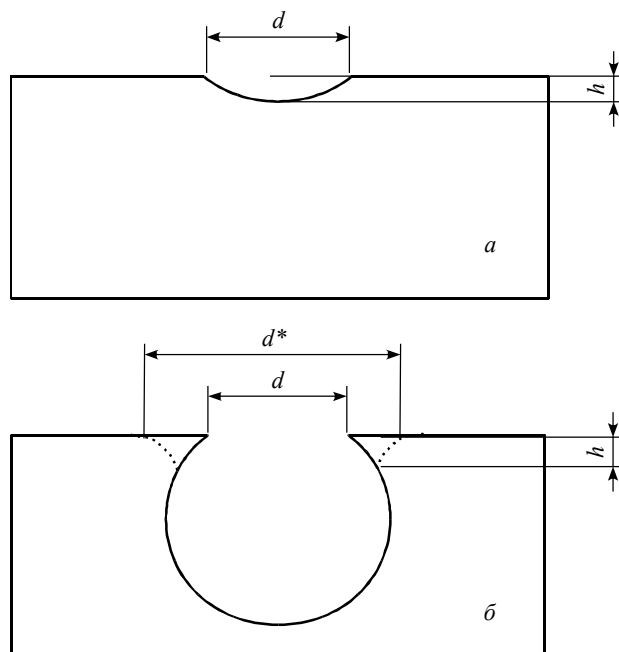


Рис. 3. Дефекты при регистрации пор:  
*a* – «блюдец»; *б* – «купол»

Суть дефекта типа «купол» заключается в разрушении тонких стенок верхнего сечения поры при возникающих в процессе подготовки шлифов напряжениях (рис. 3, *б*). Наличие данного дефекта, так же, как и в случае «блюдца», приводит к увеличению доли крупных сечений, что в конечном итоге уменьшает объемную долю пор относительно объемной доли пор, рассчитанной без учета дефектов. Вклад данного фактора в суммарную погрешность оценивается в 5–10 %. Снизить вносимую этим фактором погрешность можно за счет введения поправочных значений в используемую ФФ, однако на данном этапе работы поправка не вносилась.

Ошибка преобразования распределений была оценена путем моделирования рассеяемого объема образца, с распределенными в объеме согласно  $H(D)$  пора-

ми. Сравнение исходного распределения  $h(d)$  и распределения  $h'(d)$ , полученного по результатам моделирования, по  $R^2$  показало ошибку на уровне 0,1 %.

Также стоит отметить, что переход от сечений к объемным характеристикам пористости значительно увеличивает ошибку значений характеристик (~8–35 %). Поэтому для подготовки исходного распределения пор  $h(d)$  необходимо получать снимки с большим разрешением и пропорционально увеличивать количество измерений.

Для учета влияния описанных дефектов с помощью моделирования была получена функция формы для сферы с учетом поправок. На рис. 4 приведена модельная ФФ, используемая для данной работы, в сравнении с ФФ для сферы.

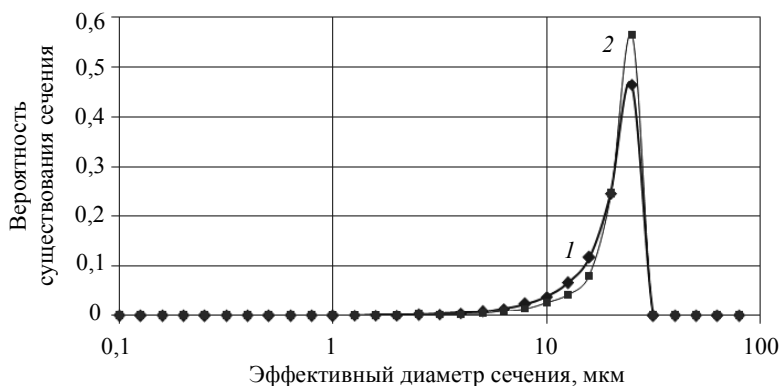


Рис. 4. Сравнение модельной (1) и аналитической (2) функций формы

На основе описанного алгоритма авторами разработан программный модуль  $h2d3d$ , входными данными для которого являлось распределение поверхностной плотности пор по размерам, а выходными распределение объемной плотности пор по размерам, а также объемная доля пор и удельный объем пор разного сорта.

### Результаты и обсуждение

Для исследования было выбрано 16 образцов от 8 партий, изготовленных по различным технологическим схемам, как в заводских, так и в лабораторных условиях. Для каждой партии было снято по 18 изображений пористой структуры при различных увеличениях и на различных микроскопах. Диапазон измерений размеров пор составил от 0,1–100 мкм. Для обработки изображений использовался программный комплекс IRBIS [7], разработанный в ОАО «ВНИИНМ». По результатам обработки построены обобщенные логарифмические гистограммы, аналогичные приведенной на рис. 1. Интервал гистограммы выбран пропорциональным  $10^{0,1}$ .

Полученные обобщенные гистограммы обработаны с помощью алгоритма  $h2d3d$ . На рис. 5 для сравнения приведены исходная гистограмма поверхностной плотности пор  $N_S$  и итоговая гистограмма объемной плотности пор  $N_V$ .

Как видно из рис. 5, характер зависимости в логарифмических координатах близок к линейному. Разброс результатов в правой части (области крупных пор) графика связан с недостаточным количеством измерений и, следовательно, меньшей достоверностью данных.

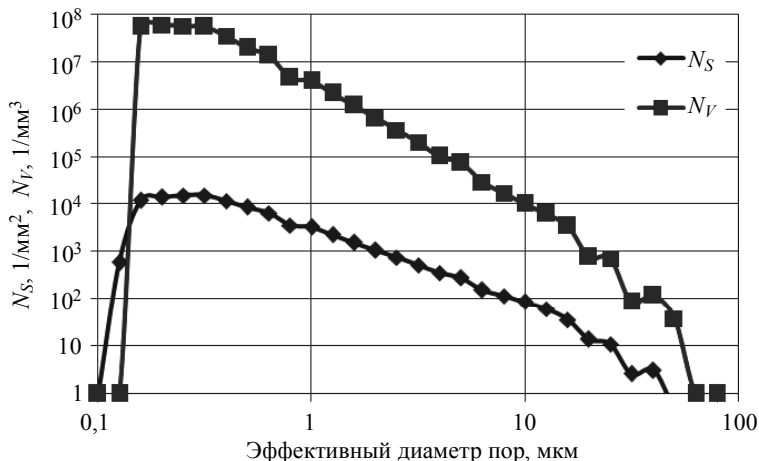


Рис. 5. Зависимость поверхностной  $N_S$  и объемной  $N_V$  плотности пор от эффективного диаметра пор

На основании параметра объемной плотности пор, показывающего количество пор данного типа в  $1 \text{ мм}^3$ , легко посчитать объемную долю и удельный объем пор. Под объемной долей пор подразумевается доля объема образца, занимаемая данным видом пор. Под удельным объемом пор подразумевается доля пор данного вида в общем объеме, занимаемом порами. Рассчитанные значения объемной доли пор для партии № 8 представлены на рис. 6. Сумма объемных долей пор дает общую пористость топливной таблетки, а следовательно, и плотность.



Рис. 6. Зависимость объемной доли пор от эффективного диаметра пор

Сводные результаты по 8 партиям приведены в таблице. В таблице приведены следующие сокращения: ОДОП – объемная доля открытых пор, уд. – удельный, об. – объемный.

Результаты преобразования по алгоритму *h2d3d*

Партия	1	2	3	4	5	6	7	8
Плотность	10,59	10,56	10,64	10,62	10,63	10,62	10,57	10,38
ОДОП, %	0,10	0,05	0,16	0,36	0,28	0,20	0,22	0,50
Об. доля пор, %	4,4	3,7	4,1	3,9	3,9	3,6	3,8	5,3
Об. доля пор < 1 мкм, %	0,5	0,4	0,6	0,6	0,2	0,1	0,1	0,5
Об. доля пор 1–10 мкм, %	2,2	1,6	2,0	2,1	1,9	2,6	2,2	2,6
Об. доля пор > 10 мкм, %	1,7	1,8	1,5	1,1	1,8	0,9	1,5	2,2
Уд. объем пор < 1 мкм, %	11	10	15	16	6	3	3	9
Уд. объем пор 1–10 мкм, %	50	42	49	54	48	72	58	49
Уд. объем пор > 10 мкм, %	39	48	36	30	46	25	39	42

Плотность большинства представленных образцов, измеренная методом гидростатического взвешивания, находится в диапазоне 10,56–10,64 г/см<sup>3</sup>, что соответствует установленным в технической спецификации требованиям на таблетки, а партия № 8 представлена как исключение для проверки чувствительности алгоритма преобразования распределения.

Получено, что объем топливной таблетки, занимаемый субмикронными порами, составляет 0,1–0,6 %, занимаемый порами, с размером 1–10 мкм – 1,6–2,6 %, занимаемый порами с размерами свыше 10 мкм – 0,9–2,2. При этом основная доля пор приходится на поры с размером от 1 мкм до 10 мкм (42–72 %) и на поры с размером более 10 мкм (25–48 %). Суммарный объем пор составил 3,6–5,3 %, что в целом соответствует данным гидростатических измерений, согласно которым объемная доля пор должна составлять 2,9–5,3 %. Причинами отклонений могут являться как описанные выше дефекты и ошибки измерений, так и другие дефекты, возникающие, например, при транспортировке или подготовке шлифов. Для дальнейшего уточнения алгоритма предполагается проведение большего количества измерений микроструктуры и модификация функции формы.

Из представленных данных следует, что предложенный алгоритм пересчета параметров пористости, измеренных в плоскости шлифа, позволяет получить в целом достоверные характеристики распределения пор в объеме топливной таблетки.

### Заключение

Обобщены сведения о характерных особенностях пор. Большинство сечений пор представляют собой форму, близкую к кругу, а использование параметра эффективный диаметр еще сильнее снижает ошибки, связанные с отличием формы сечения от круга. Сделан вывод о возможности в первом приближении для описания 3D-формы поры использовать сферы.

Проанализированы особенности регистрирующих систем и методик, влияющих на результаты пересчета. Описаны возникающие при обработке изображений микроструктуры дефекты, вносимые ими ошибки и способы снижения их влияния.

Предложен формат входных данных для пересчета из 2D в 3D для существующих методик. Предлагается использовать обобщенные гистограммы распределения пор по размерам с логарифмическим интервалом. Предложено и обосновано

вано введение дополнительных параметров пористости: поверхностная плотность пор, объемная плотность пор, удельный объем пор, объемная доля пор.

Проведен пересчет распределений пористости из 2D в 3D для 8 партий образцов в диапазоне размеров 0,1–100,0 мкм.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. *Schwartz H.A.* The metallographic determination of the size distribution of temper carbon nodules // *Metals and Alloys*. 1934. V. 5. P. 139–140.
2. *Scheil E.* Statistische Gefügeuntersuchungen // *Zeitschrijl jeer Afetollkunda*. 1935. V. 27. No. 9. P. 199–208.
3. *Saltykov S.A.* The determination of the size distribution of particles in an opaque material from the measurement of the size distribution of their sections // *Stereology*. Springer Berlin Heidelberg. 1967. P. 163–173.
4. *Gulbin Y.* On estimation and hypothesis testing of the grain size distribution by the Saltykov method // *Image Anal. Stereol.* 2008. V. 27. P. 163–174.
5. *Takahashi J., Suito H.* Evaluation of the accuracy of the three-dimensional size distribution estimated from the Schwartz-Saltykov method // *Metallurgical and Materials Transactions*. 2003. V. 34. No. 1. P. 171–181.
6. *Heilbronner R.* How to derive size distributions of particles from size distributions of sectional areas // *Conférence Universitaire de Suisse Occidentale. 3ème Cycle Séminaire: "Analyse d'images et morphométrie d'objets géologiques,"* Organisé à Neuchâtel. Institut de Géologie. Université de Neuchâtel. 2002.
7. *Свидетельство* о государственной регистрации ПО IRBIS № 2013660806, от 19.11.2013, Правообладатели: ОАО «ВНИИНМ», ОАО «ТВЭЛ».

Статья поступила 02.03.2015 г.

*Bakhteev O.A., Lysikov A.V., Dyagterev N.A., Mikheev E.N.* DEVELOPING THE METHOD OF VOLUMETRIC PORE DISTRIBUTION MEASURING FOR URANIUM DIOXIDE PELLETS

DOI 10.17223/19988621/34/5

In order to verify reliability of fuel assembly exploitation, it's necessary to know the volumetric distribution of microstructure parameters in 3D. In this paper, we propose to use standard methods of microstructure analysis with further recalculation of characteristics in 3D. This paper represents initial data requirements, algorithm of 3D-conversion, possible errors, and ways of their minimization. Results of the investigation and conversion of porosity of fuel pellets produced from different powders are presented.

Keywords: TVEL (fuel element), pellets, algorithm, porosity.

*BAKHTEEV Oleg Alexandrovich* (Engineer, Joint Stock Company «A.A. Bochvar High-technology Research Institute of Inorganic Materials», Moscow, Russian Federation)

*LYSIKOV Alexandr Vladimirovich* (Candidate of physical and mathematical science, Joint Stock Company «A.A. Bochvar High-technology Research Institute of Inorganic Materials», Moscow, Russian Federation)

E-mail: avlynikov@bochvar.ru

*DYAGTEREV Nikita Alexandrovich* (Engineer, Joint Stock Company «A.A. Bochvar High-technology Research Institute of Inorganic Materials», Moscow, Russian Federation)

*MIKHEEV Evgeny Nikolaevich* (Candidate of physical and mathematical science, Joint Stock Company «A.A. Bochvar High-technology Research Institute of Inorganic Materials», Moscow, Russian Federation)



## REFERENCES

1. Schwartz H.A. The metallographic determination of the size distribution of temper carbon nodules. *Metals and Alloys*, 1934, vol. 5, pp. 139–140.
2. Scheil E. Statistische Gefügeuntersuchungen. *Zeitschrijl jeer Afetollkunda*, 1935, vol. 27, no. 9, pp. 199–208.
3. Saltykov S.A. The determination of the size distribution of particles in an opaque material from the measurement of the size distribution of their sections. *Stereology*. Berlin, Heidelberg, Springer, 1967, pp. 163–173.
4. Gulbin Y. On estimation and hypothesis testing of the grain size distribution by the Saltykov method. *Image Anal. Stereol.*, 2008, vol. 27, pp. 163–174.
5. Takahashi J., Suito H. Evaluation of the accuracy of the three-dimensional size distribution estimated from the Schwartz-Saltykov method. *Metallurgical and Materials Transactions*, 2003, vol. 34, no. 1, pp. 171–181.
6. Heilbronner R. How to derive size distributions of particles from size distributions of sectional areas. *Conférence Universitaire de Suisse Occidentale. 3ème Cycle Séminaire: "Analyse d'images et morphométrie d'objets géologiques"*, Organisé à Neuchâtel. Institut de Géologie. Université de Neuchâtel, 2002.
7. *Svidetel'stvo o gosudarstvennoy registratsii PO IRBIS № 2013660806*, ot 19.11.2013, Pravoo-bladateli: OAO «VNIINM», OAO «TVEL». (in Russian)