文章类型：论文|刊号（ISSN）：2737-4505(P) / 2737-4513(O)

大晶粒 UO_2芯块微观结构检验方法研究

阮辉[1] 李涛[1] 王大波[1] 谭俊杰[2]
1 中广核铀业发展有限公司 2 中广核研究院有限公司
DOI:10.12238/etd.v6i3.14337

[摘 要] 本文通过试验验证,确立了大晶粒UO_2芯块微观结构检验方法。对于晶粒尺寸测量,采用200倍放大倍数,测量视场数为15时,在95%的置信概率下,晶粒尺寸测量的精密度优于5%。对于气孔分布测量,采用10×和20×物镜组合的方法,通过合理设置观测视场数,在95%的置信概率下,气孔分布测量的精密度优于10%。
[关键词] ATF；芯块；晶粒尺寸；气孔分布
中图分类号：O655.4 文献标识码：A

Research on the microstructure inspection method of large grain UO_2 pellets

Hui Ruan[1] Tao Li[1] Dabo Wang[1] Junjie Tan[2]
1 CGNPC Uranium Resources CO,. Ltd.
2 China Nuclear Power Technology Research Institute Co., Ltd.

[Abstract] Through the experimental verification, the microstructure inspection method of large grain UO_2 pellets is established. For grain size measurements, the precision of grain size measurements is better than 5% at 95% confidence probability with 200 magnification and a measurement field of view of 15. For the measurement of stomatal distribution, the precision of stomatal distribution measurement is better than 10% with 95% confidence probability by using the combination of 10× and 20× objective lenses.
[Key words] ATF; pellet; grain size; stomatal distribution

引言

日本福岛核事故发生以后,核电站在事故条件下的固有安全性得到了世界各国的高度重视,开发下一代事故容错燃料(accident tolerant fuel,ATF)成为了核能领域的研究热点[1]。为了提升反应堆的固有安全性,增加核燃料的燃耗,提高核电的经济性,制备新型事故容错燃料芯块(ATF芯块)具有重要意义[2]。在这方面,存在若干不同的技术路线,如具备高导热率的掺杂型UO2芯块[3]、大晶粒UO_2芯块、铀硅芯块(U_3Si_2)、铀氮芯块(UN)、全陶瓷微密封芯块(FCM)及惰性基弥散燃料芯块(IMDP)等。其中,大晶粒UO_2芯块因具备低辐照肿胀、低裂变气体释放量以及优异的抗芯块-包壳相互作用(PCI)能力,近年来受到越来越多的关注。

虽然世界各国在大晶粒UO_2芯块的技术路线上存在差异,但普遍关注微观结构、蠕变性能、热物理性能及腐蚀性能。平均晶粒尺寸和气孔分布是评价大晶粒UO_2芯块微观结构的核心技术指标。有研究表明,随着晶粒尺寸的增长,UO_2芯块的热导率和裂变气体包容率也随之增长。一般来说,气孔会破坏芯块的连续性,气孔率越高,UO_2芯块的热导率越低；作为裂变气体释放的通道,气孔分布对芯块的辐照稳定性有重要影响,与核安全息息相关。

我国在UO_2芯块的微观结构检验方面已经有了较为成熟的经验,EJ/T 688-1998《烧结二氧化铀芯块微观结构检验方法》中规定了样品的制备步骤、气孔分布及平均晶粒尺寸的测量方法。但是,随着金相检验软件和硬件的升级迭代,相应的检验方法并未随之升级,其适用性已经大打折扣。中核建中核燃料元件有限公司早在2022年便已开展了相关研究,并针对性地提出了改进方法。在大晶粒UO_2芯块微观结构检验领域,目前还未见相关报道。为提高气孔分布和晶粒尺寸测量方法的适用性,加强检验结果的准确性,本文旨在EJ/T 688-1998的基础上结合行业内相关经验,对大晶粒UO_2芯块的微观结构检验方法进行研究。

1 样品制备

从金相检验的原理出发,样品制备和图片质量是确保检验结果准确的前提。在大晶粒UO_2芯块的微观结构检验过程中,提供一个高质量无瑕的观测面,保持气孔和晶粒在截面上的原始形态是准确测量的关键要素。

1.1样品信息

试验所用的大晶粒UO_2芯块为实验室自制,样品在同一个批次的同一舟中随机抽取。

1.2样品制备

Copyright © This work is licensed under a Commons Attibution-Non Commercial 4.0 International License.

1.2.1镶嵌

本试验采用Citopress-5型压力热镶样机(丹麦Struers)对芯块样品进行热镶嵌,热镶树脂选择酚醛树脂。

1.2.2样品磨抛

如表1所示,本试验采用Tegramin-25自动研磨抛光机(丹麦Struers)对样品进行磨抛,优先在磨盘上将样品粗磨至接近中心轴线处,再经过两轮SiC砂纸精磨后,采用1μm金刚石悬浮液对样品进行抛光,抛光后的样品观测面应为光亮的镜面。

表1 大晶粒UO_2芯块磨抛参数表

步骤	研磨剂/粒度	压力/N	转速/rpm	时间/min
1	220# MD磨盘	20	150	9
2	500# SiC砂纸	20	150	4
3	1200# SiC砂纸	20	150	4
4	1μm金刚石悬浮液抛光剂 丝绸抛光布	20	150	4

注：每完成一步后都需要对样品进行5min超声清洗。

1.2.3样品腐蚀

将清洗好的样品用腐蚀液腐蚀1~3min以显示晶界,随后在超纯水中超声清洗10min,干燥后即可用于晶粒尺寸测量。腐蚀液为硫酸/过氧化氢溶液($V(H_2SO_4)$:$V(H_2O_2)$=1:9)。

2 微观结构分析

试验所用检测设备为Axio Imager.M2m型全自动正置式金相显微镜(德国ZEISS),搭配了电动样品台和自动聚焦系统。测试软件为Zen Core全自动金相分析软件(德国ZEISS),配备了晶粒尺寸分析、孔径分布测量模块。设备在使用前已经过第三方机构的计量校准。

2.1晶粒尺寸测量

2.1.1放大倍数

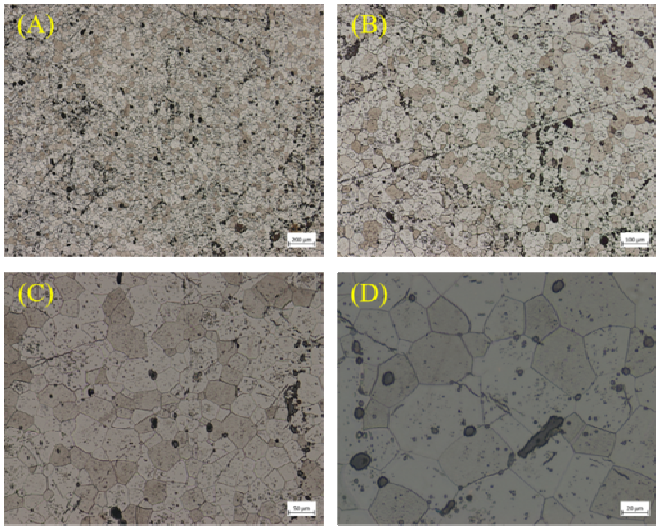

图1 不同放大倍数下大晶粒UO_2芯块金相图片
(A：50×、B：100×、C：200×、D：500×)

根据《烧结二氧化铀芯块微观结构检验方法》(EJ/T 688-1998)的相关要求,在进行晶粒尺寸测量时应选择合适放大倍数,使得测量视场内晶粒数为50~200个。如图1所示,当放大倍数为50倍和100倍时,视场内晶粒个数较多,不满足测试要求,当放大倍数为500倍时,视场内晶粒个数较少,也不满足测试要求。当放大倍数为200倍时,测量视场内满足晶粒个数为50~200个。

根据《金属平均晶粒度测定方法》(GB/T 6394-2017)的相关要求,应选择适当的测量网格长度和放大倍数,以保证最少能截获约50个截点。如图2所示,当放大倍数为200倍,选择网格长度为2255μm时,所获得的截点数为72个,满足测试要求。

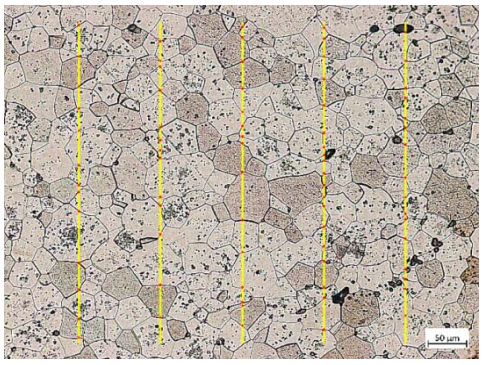

图2 200倍下大晶粒UO_2芯块晶粒尺寸测量界面

2.1.2测试视场数

在放大倍数为200倍下随机选择了5个视场进行测定,并按照如下公式计算平均截点数N_L、平均晶粒尺寸P_L、标准偏差S及变异系数C.V,计算结果见表2。

$$N_L=\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}N_i \tag{1}$$

$$P_L=\frac{L}{N_L} \tag{2}$$

$$S=\sqrt{\frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(N_i-N_L)^2} \tag{3}$$

$$C.V=S/N_L \tag{4}$$

式中：N_L——平均截点数；
N_i——第i个视场测量模板与晶界相交点数；
P_L——平均截距即平均晶粒尺寸,μm；
L——截线长度,μm；
S——标准偏差；
C.V——变异系数；
n——测试视场数。

表2 晶粒尺寸测量结果

序号	1	2	3	4	5
L	2255	2255	2255	2255	2255
N_i	58	70	61	75	66
N_L			66		
S			6.82		
$C.V$			0.1033		

Copyright © This work is licensed under a Commons Attibution-Non Commercial 4.0 International License.

对照《烧结二氧化铀芯块微观结构检验方法》(EJ/T 688-1998)后的附图可知,在测试视场数为5,变异系数为0.1033时,测试结果的精密度约为10%,需要增加测试视场数以提高测试精密度。

如表3所示,随着测量视场数的增加,标准偏差和变异系数逐渐减小。当测量视场数为10时,变异系数为0.0799,当测量视场数为15时,变异系数为0.0682,在95%置信概率下,此时测试的精密度优于5%。

表3　晶粒尺寸测量统计结果

n	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
$\bar{X}$	66	65.17	64.86	65.38	65.22	65.70	66.19	66.25	66.31	66.43	66.67
S	6.82	6.43	5.93	5.68	5.33	5.25	5.23	4.99	4.79	4.62	4.55
CV	0.1033	0.0987	0.0914	0.0869	0.0818	0.0799	0.0790	0.0754	0.0722	0.0695	0.0682

由表4所示,在放大倍数为200倍,测量视场数为15的条件下分别对6个样品进行了晶粒尺寸测量。对照《烧结二氧化铀芯块微观结构检验方法》(EJ/T 688-1998)后的附图可知,6个样品的晶粒尺寸测量结果在95%置信概率下,精密度均优于5%。

表4　不同样品晶粒尺寸测量统计结果

样品编号	JX-1-01	JX-1-02	JX-1-03	JX-1-04	JX-1-05	JX-1-06
$\bar{X}$	66.67	72.47	78.80	75.20	62.13	48.73
S	4.55	4.21	6.73	5.48	5.69	4.65
CV	0.0682	0.0580	0.0855	0.0729	0.0916	0.0955

2.2气孔分布测量

2.2.1物镜测量范围

根据《烧结二氧化铀芯块微观结构检验方法》(EJ/T 688-1998)的相关要求,首先进行物镜测量范围的选取。如图3所示,在100倍下,样品的气孔分布较均匀,主要为0~10μm的微孔。

图3　大晶粒UO2芯块抛光态金相图片

对某一倍数物镜用于气孔分布测量时,如果被测气孔过小,由于物镜分辨能力的限制,将会产生较大的分辨率损失,而被测气孔过大,又会产生较大的边缘损失。因此,某一倍数物镜只能对某一尺寸范围内的气孔进行准确测量。无论是分辨率损失还是边缘损失,都会导致测量的气孔面积小于其真值。当采用两个或多个物镜对同一尺寸气孔进行测量时,气孔面积测量结果越大的物镜对该尺寸气孔的测量越准确。

如图4所示,对小于2.0μm的气孔,20×物镜测量结果更准确,对大于2.0μm的孔,10×物镜的测量结果更为准确,即20×物镜的有效测量范围为0~2.0μm,10×物镜的有效测量范围为>2.0μm。

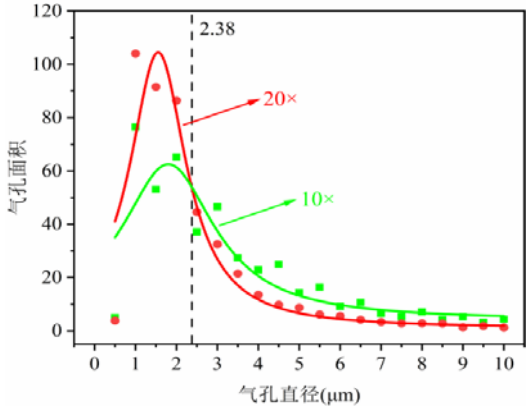

图4　10×和20×物镜的测得的气孔分布

根据技术条件的要求,需要统计的气孔直径为0~2μm、0~10μm、0~45μm,因此针对直径为0~2μm气孔优先采用20×物镜(放大倍数200倍)进行测定,针对直径为2~45μm气孔可优先采用10×物镜(放大倍数100倍)进行测定。

2.2.2测量视场数

分别采用10×物镜和20×物镜随机选取10个视场测定样品中0~2μm及2~45μm气孔,测量结果见表5。

表5　气孔分布波动性考察

物镜	测量气孔范围	孔隙率平均值	标准偏差
10×	2~45μm	2.26	0.67
20×	0~2μm	1.02	0.11

根据《烧结二氧化铀芯块微观结构检验方法》(EJ/T 688-1998)的相关要求,参照如下公式计算不同物镜下所需的测试视场数:

$$n=\left(\frac{KS_P}{P\varepsilon}\right)^2 \quad (5)$$

式中:n——测量视场个数;

K——置信因子;

SP——视场间孔隙率标准偏差;

P——视场间孔隙率平均值;

ε——给定的测量精度。

结合实际检测需求及文献中查得的精密度要求,将置信概率设置为95%,测量精度设置为10%,此时置信因子K(1.96)可通过查表得到。将其代入上述公式中,可计算得到10×物镜和20×物镜能满足置信概率及测量精度所需的测量视场数分别为34个和5个。

为保证在视场分布的均匀性,在10×物镜下选择测量36个

Copyright © This work is licensed under a Commons Attibution-Non Commercial 4.0 International License.

视场,在芯块测量截面上按照6×6均匀排列;在20×物镜下选择测量6个视场,在芯块测量截面上按照2×3均匀排列。并保证在不同物镜下所选择的测量视场能够均匀分布在每个样品边缘、中间和中心3个区域。

如表6所示,按照上述测量条件分别对6个样品进行了气孔分布测量,6个样品孔隙率平行测定结果的平均值、标准偏差和相对标准偏差分别为4.69%、0.25%和5.29%,即此时测试结果的精密度(相对标准偏差)小于10%,满足检测要求。

表6　不同芯块气孔分布测量结果

样品编号	孔隙率(%)		总孔隙率 P(%)
	0~2μm	2~45μm	
JX-1-01	0.96	4.15	5.08
JX-1-02	1.07	3.44	4.51
JX-1-03	0.87	3.72	4.59
JX-1-04	0.83	3.63	4.46
JX-1-05	1.04	3.54	4.58
JX-1-06	0.99	3.92	4.91
总孔隙率平均值		4.69%	
总孔隙率标准偏差		0.25%	
总孔隙率相对标准偏差		5.29%	

3 结论

(1)针对大晶粒UO_2芯块晶粒尺寸测量,当放大倍数为200倍,测试视场个数为15时,在95%的置信概率下,晶粒尺寸测量的精密度优于5%。

(2)针对大晶粒UO_2芯块气孔分布检测,200倍放大倍数适用于0~2μm的气孔检测,测试视场个数为36;100倍放大倍数适用于2μm以上的气孔检测,测试视场个数为6时,在95%的置信概率下,气孔分布测量的精密度优于10%。

[参考文献]

[1]高瑞,杨振亮,李冰清,等.二氧化铀基事故容错燃料芯块研究进展[J].中国材料进展,2019,38(01):58-67.

[2]付浩,彭振驯,廖业宏,等.基于事故容错燃料的高燃耗组件研究进展[J].材料导报,2024,38(22):111-122.

[3]温丰,杜江平,赵雨梦,等.氧化石墨烯掺杂UO_2芯块制备工艺及性能研究[J].核技术,2024,47(06):170-178.

作者简介:

阮辉(1997--),男,汉族,湖北咸宁人,硕士研究生,助理工程师,主要从事理化检验工作。

Copyright © This work is licensed under a Commons Attibution-Non Commercial 4.0 International License.