

PACS: 81.20.Ev

В.В. Пашинский

## МЕТОДИКА КОЛИЧЕСТВЕННОГО СТЕРЕОЛОГИЧЕСКОГО АНАЛИЗА ВЗАИМНОГО РАСПОЛОЖЕНИЯ ЧАСТИЦ В СПЕЧЕННЫХ МАТЕРИАЛАХ

Донецкий национальный технический университет  
ул. Артема, 58, г. Донецк, 83000, Украина

Статья поступила в редакцию 29 октября 2007 года

*Предложены количественные критерии оценки конгломератов частиц в порошковых материалах. Критерии разработаны для связанной и изолированной структур. Представлен алгоритм их определения и предложена программа для его реализации. Методики использованы для количественной оценки влияния параметров производства на структуру твердых сплавов на основе карбида вольфрама.*

Структура негомогенных материалов представляет собой сочетание как минимум двух составляющих, различающихся по характеристикам. По этой причине для установления корреляции между структурой и механическим поведением этих сплавов недостаточно знать размеры и форму каждой фазы, а необходимо уметь оценивать их взаимное положение. Для многих процессов материал можно аппроксимировать как трехмерное распределение одной фазы в непрерывной матрице второй.

Важной характеристикой в этом случае является оценка взаимосвязанности частиц, окруженных матрицей. Наиболее строгое определение связности можно дать с использованием аппарата топологии. Для описания непрерывности поверхностей в пространстве в топологии вводят две инварианты: число несвязанных поверхностей  $N$  и род поверхности  $G$  – характеристики, не зависящей от формы и размеров [1–3]. Величина  $N$ , как и ее инвариантность к форме и размерам объемов, ограниченных отдельными поверхностями, не требует дополнительных пояснений. Инварианта  $G$  – число замыкающихся на себе и не пересекающих друг друга разрезов, которые можно сделать над поверхностями, не увеличивая инварианты  $N$ . Независимо от формы и размеров род  $G$  характеризует общее свойство этих поверхностей – их связанность.

Задачей стереологии является восстановление пространственных размеров, формы и распределения структурных составляющих на основании простых измерений, произведенных на случайном сечении. Используемые при этом способы получения первичной информации (измерения площадей, от-

резков, счет точек и т.п.) подробно изложены в работах Салтыкова [1], Чернявского [2], Андервуда [4]. Отметим, что наиболее производителен и пригоден для автоматизации линейный анализ (метод случайных секущих), который используется для определения характеристик связности.

Стереологические характеристики структуры по своей природе являются статистическими величинами, поэтому непосредственно определять топологические инварианты с помощью стереологических методов невозможно. Возникает задача стереологического эквивалента топологической инварианты связности  $p_1$ . Эта задача в основном решена в работе Герленда [3]; вопрос о статистических характеристиках связности рассмотрен также в [5,6].

Для распространения трещины и обеспечения свойств типа проводимости важно существование непрерывных путей не только между любыми крайними частицами карбидного скелета, но и между некоторыми, расположенными внутри него. Поэтому необходим критерий существования непрерывных протяженных цепочек частиц. Для его нахождения Герленд [3] использовал статистические модели ветвящихся цепей и просачивания. Расчетом первой модели установлено  $N_{cr} = 1.6$ , а расчет по второй модели дал различные значения  $N_{cr}$  в зависимости от принятой упаковки частиц. Для плотноупакованных частиц  $N_{cr} = 1.4-1.5$ .

Эти результаты нашли экспериментальное подтверждение. Таким образом, среднее число контактов, приходящихся на одну частицу, позволяет количественно оценить связность в структуре, и потому данную характеристику можно считать эквивалентом топологической инварианты связности  $G$ .

Среднее число контактов  $N$  можно определить с помощью замеров на случайных сечениях, т.е. стереологически. К сожалению, простые замеры позволяют строго определить эту характеристику только для сферических частиц, имеющих контакты в виде круглых площадок. В таком случае расчетная формула имеет вид

$$N = 8/\pi^2 (N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha})^2 (N_{L\alpha\beta} + 2N_{L\alpha\alpha}) / 2N_{L\alpha\alpha}, \quad (1)$$

где  $N_{A\alpha}$ ,  $N_{A\alpha\alpha}$  – числа соответственно частиц фазы  $\alpha$  и контактов частиц фазы  $\alpha$  на единице площади случайного сечения;  $N_{L\alpha\beta}$ ,  $N_{L\alpha\alpha}$  – числа пересечений случайных секущих с внутрифазными границами в фазе  $\alpha$  и границами зерен соответственно фаз  $\alpha$  и  $\beta$ .

Оценка по формуле (1) дает хорошее приближение для твердых сплавов с округлыми частицами карбидной фазы, например (Ti, W)C-Co.

Часто для оценки развития карбидного скелета в твердых сплавах используют так называемую степень контакта  $C_{\alpha\alpha}$  – относительную долю контактной поверхности («смежность»). Эта величина изменяется от 1 до 0 при переходе соответственно от «полностью связанной» однофазной структуры к «полностью разделенной» двухфазной структуре, в которой неконтактирующие частицы одной из фаз как бы погружены в другую фазу – матрицу.

Следует отметить, что однозначно оценивать развитость карбидного скелета по величине  $C_{\alpha\alpha}$  можно не во всех случаях [6], поскольку одинаковые ее значения могут быть как у разветвленной непрерывной структуры, состоящей из частиц, контактирующих по малым площадкам (скелетная структура), так и у разделенных частиц второй фазы (конгломератов), включающей несколько частиц с широкими контактами (матричная структура). Другими словами,  $C_{\alpha\alpha}$  не характеризует непрерывности структуры, и ее нельзя считать стереологической инвариантой  $G$ .

Из приведенной формулы следует, что все стереологические характеристики связности могут быть измерены методом случайных секущих. Однако на практике их определение связано с большим объемом рутинных замеров, что требует использования средств автоматизации измерения, выбора наиболее информативных характеристик и разработки количественных методик их нахождения.

Поэтому актуальной задачей является разработка методик, позволяющих количественно оценить степень неоднородности распределения частиц в матрице.

### Методика эксперимента

На первом этапе решения этой задачи была разработана процедура полуавтоматического количественного анализа с использованием прикладного пакета *Image Tool*, которая позволяет получить некоторые характеристики, косвенно отражающие равномерность распределения частиц. В частности, программа измеряет и накапливает значения хорд случайных сечений частиц и отрезков матрицы между внешними контурами частиц, что можно трактовать как средний условный размер частицы и среднее условное свободное расстояние соответственно. Для получения дополнительной количественной информации о структуре программа была дополнена операциями вычисления и некоторых других стереологических характеристик. В частности, перед началом работы основной процедуры необходимо определить общее число частиц в исследуемом изображении (вручную или с помощью операции *Number* программы *Image Tool*) на площади *Area* (параметр *Area* автоматически определяется программой). По завершении цикла обработки изображения программа рассчитывает следующие характеристики: число участков фаз  $Num_A$ ,  $Num_B$ ; долю фаз  $D_a$ ,  $D_b$ ; средний размер участков фаз  $L_a$ ,  $L_b$ ; смежность частиц одной из фаз  $Sm_A$ ; межцентровое расстояние  $L_c$ ; среднее свободное расстояние  $L_f$ .

По физическому смыслу величины  $L_f$  и  $L_b$  совпадают, однако вычисляются программой по разным зависимостям (в частности, величина  $L_b$  – это условный средний размер), поэтому их численные значения должны коррелировать, но не совпадать.

Однако указанные параметры могут характеризовать взаимное расположение частиц карбидной фазы только в структурах с близкой морфологией.

Проблема же оценки удельного числа контактов наталкивается на определенные трудности. Они связаны с тем, что для перехода от характеристик, найденных по плоским сечениям, к объемным необходимо введение гипотез о форме частиц и площадок контакта. В частности, для сферических соприкасающихся частиц можно использовать зависимость (1). Однако даже при таком упрощающем предположении определение отношения  $N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}$  требует прямого подсчета всех точек контакта, что трудоемко. Поэтому для упрощения вычислений был разработан способ нахождения  $N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}$  на основании данных, получаемых при работе программы полуавтоматического анализа.

### Полученные результаты и их обсуждение

В процессе работы программы происходит вычисление величин  $Num_A$  (количество пересечений с частицами) и  $N_{aa}$  (количество пересечений границ типа «частица–частица»). В общем случае величина  $N_{aa}$  зависит как от количества контактов между частицами, так и от протяженности этих контактов, и  $N_{aa} / Num_A \neq N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}$ . Однако было введено предположение, что для структур с близкой объемной долей частиц и близким размером частиц средняя протяженность контактов является постоянной величиной и существует зависимость

$$N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha} = f(N_{aa} / Num_A). \quad (2)$$

Для получения этой зависимости было проведено исследование структуры образцов различных партий твердого сплава ВК-15, изготовленного методом горячего прессования. Отношение  $N_{aa} / Num_A$  было найдено в результате анализа изображения с использованием разработанной программы, а отношение  $N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}$  – путем прямого подсчета по микрофотографиям. Очевидно, что при  $N_{aa} / Num_A = 0$  значение второго отношения также обращается в нуль. Экспериментально определенные значения находятся в достаточно узкой области (рис. 1), что подтверждает правильность сделанных ранее допущений.

Аппроксимируя зависимость прямой линией с учетом прохождения ее через нуль, получаем следующее регрессионное уравнение:

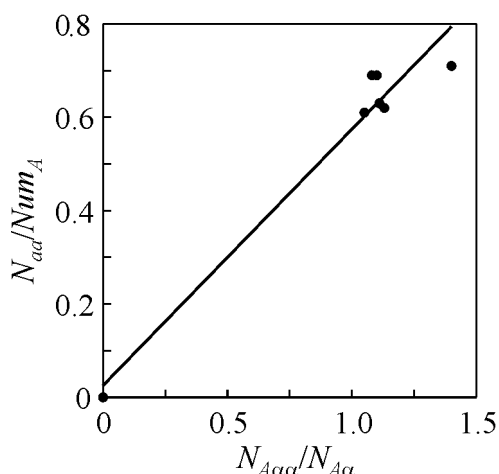
$$N_{aa} / Num_A = 0.011 + 0.547(N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}). \quad (3)$$

Пренебрегая значением свободного члена ввиду его малости, считаем, что

$$N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha} = 1.828(N_{aa} / Num_A). \quad (4)$$

Тогда уравнение (1) применительно к анализу структуры сплава ВК-15, полученного при постоянных технологических параметрах, приобретает вид

$$N = 2.71(N_{aa} / Num_A)^2 (N_{L\alpha\beta} + 2N_{L\alpha\alpha}) / 2N_{L\alpha\alpha}. \quad (5)$$



**Рис. 1.** График зависимости отношения величин  $N_{aa}/Num_A$  от протяженности контактов  $N_{Aa\alpha}/N_{A\alpha}$  для твердого сплава ВК-15

Ограничением подобного подхода является необходимость экспериментального нахождения значения коэффициента в уравнении (5), однако при работе с определенной группой материалов значение коэффициента можно считать стабильным.

Для проверки работоспособности программы была проведена обработка одного и того же реального изображения сплава ВК-15 с различными значениями шага между линиями сканирования. Расстояние между линиями в любом случае больше, чем средний размер зерна карбида. Результаты определения параметров приведены в табл. 1.

Таблица 1

**Количественные характеристики структуры при различных расстояниях между секущими  $h$**

Количественный параметр структуры	$h, \mu\text{m}$				
	1.9	2.4	2.9	3.3	среднее значение
Объемная доля карбида $D_K$	0.732	0.696	0.717	0.718	0.723
Количество зерен карбида $Num_K$	168	131	113	100	128
Количество участков связки $Num_B$	94	80	63	57	74
Межцентровое расстояние $L_c$	1.406	1.654	1.735	1.644	1.61
Среднее свободное расстояние $L_f$	1.205	1.337	1.215	1.219	1.26
Средний условный размер участков связки $L_b$	1.077	1.127	1.09	1.069	1.09
Средний условный размер зерна карбида $L_K$	1.647	1.579	1.543	1.551	1.58
Степень смежности структуры $Sm$	0.442	0.397	0.444	0.432	0.43
Среднее число контактов $N$	1.19	1.076	1.194	1.159	1.154

Из таблицы видно, что изменение расстояния между линиями сканирования в пределах 1–2  $L_K$  не оказывает систематического влияния на колебания измеряемых параметров. Поэтому выбор шага сканирования  $h$  при условии  $h > L_K$  определяется удобством работы оператора и возможностью набора статистически значимого количества первичных измерений.

Данные, получаемые в результате работы программы, позволяют подойти к проблеме оценки среднего числа контактов зерен из несколько иных исходных посылок. Возникновение контакта между частицами в двухфазной структуре носит вероятностный характер, и его формирование зависит от

количества частиц, их объемной доли и характеристик формы. В свою очередь, как показано выше, характеристика формы может быть задана для плоской фигуры соотношением площади и периметра. Таким образом, факторами, влияющими на вероятность возникновения контакта, являются удельное число частиц, удельная площадь, занимаемая ими в плоском сечении, и удельный периметр соприкосновения частиц. При этом предположим, что вероятность итогового события пропорциональна произведению указанных характеристик.

Рассмотрим двумерную картину, возникающую, например, при металлографическом исследовании шлифа. В двухфазном материале каждая частица может иметь контакты двух типов – с такой же частицей или с участком матричной фазы. Очевидно, что вероятность формирования контакта между двумя частицами тем выше, чем больше доля частиц в общем количестве контактирующих элементов, объемная доля частиц и смежность частиц исследуемой фазы в материале. Тогда количество контактов, приходящееся на одну частицу, можно описать соотношением (обозначения величин – согласно табл. 1)

$$N = A \frac{Num_K}{Num_K + Num_B} SmD_K, \quad (6)$$

где  $A$  – среднее число контактов, приходящееся на одну частицу в структуре, сформированной только фазой  $K$ . Качественный анализ зависимости (6) показывает, что она качественно правильно отражает влияние каждой из структурных характеристик на суммарную вероятность, которая становится равной единице только при условии, что все три сомножителя равны единице, и обращается в нуль, если хотя бы один из сомножителей равен нулю. Основной проблемой является определение величины  $A$ . Для уточнения ее значений можно воспользоваться экспериментальным методом, например аппроксимацией зависимости  $N = f(D_K)$  для значения  $D_K = 1$ . Однако такой способ определения значения  $A$  сопряжен с существенными экспериментальными трудностями, поэтому целесообразно оценить эту величину из общих соображений.

Для широкого класса однофазных структур (для них выполняется условие  $D_K = 1$ ), в которых форма структурных элементов близка к равноосной, число контактов, приходящихся на одну частицу, является фактически координационным числом упаковки. Известно [2], что для плоских сечений равноосных структурных элементов эта величина находится в пределах 5–6. Подставив значения соответствующих параметров из табл. 1 в соотношение (6), получим  $N = 0.989–1.182$ , тогда как экспериментально найденное значение с использованием соотношения (5) равно 1.154. Таким образом, обе зависимости дают достаточно хорошо совпадающие результаты. Определенное методом подбора параметра значение  $A$  для структуры сплава ВК-15 (табл. 1) составляет 5.82, что достаточно близко к этому значению для равноосной гексагональной сетки границ зерен  $A = 6$ .

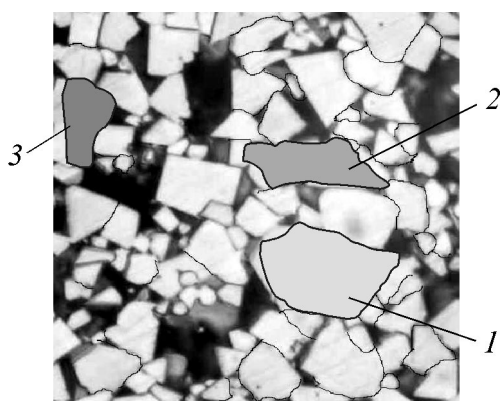


Рис. 2. Пример двухфазной структуры с формированием конгломератов (сплав ВК-15)

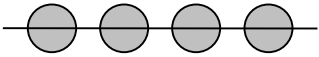
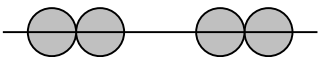
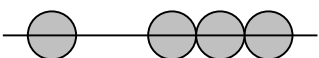

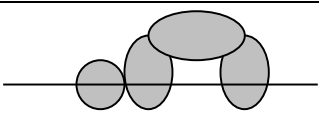
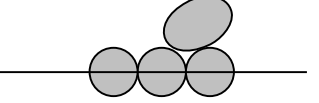
Еще одной характеристикой структуры является наличие в ней конгломератов частиц, т.е. их скоплений. Автоматическое определение их наличия затруднено в связи с отсутствием однозначного критерия, отличающего скопление частиц от единичной частицы. При автоматическом анализе с использованием программы *Image Tool* она может выделять в качестве единичных объектов как отдельные частицы, так и их скопления. Из рис. 2 видно, что конгломерат частиц 2 имеет схожие размеры с единичной частицей 1 и близкие характеристики формы с единичной частицей 3.

Следовательно, ни одна из этих характеристик не может служить объективным признаком наличия конгломератов в структуре. Существование внутренних границ в конгломерате не является алгоритмизируемым признаком, хотя может легко выявляться оператором. При выявлении конгломератов в полуавтоматическом режиме признаком их наличия может быть присутствие нескольких последовательных контактов частиц одного типа. Поэтому алгоритм дополняется операцией формирования массивов последовательностей одноименных контактов, которые накапливаются в памяти и могут быть сохранены и выведены для дальнейшего анализа. Работа оператора при этом не изменяется, так как и в предыдущем варианте он вручную идентифицировал тип контакта на пересекаемой границе путем нажатия соответствующих клавиш.

В случае, когда объемное содержание фазы меньше предельного, соответствующего образованию связанной структуры, оценить наличие конгломератов можно также, исходя из вероятностного подхода, использованного для вывода соотношения (6). При реализации линейного анализа вероятность пересечения линией сканирования границ контакта одноименных частиц пропорциональна как количеству контактов, так и протяженности их линии. Вероятность пересечения линией сканирования собственно частицы пропорциональна занимаемой ею площади и количеству частиц. Поэтому в качестве обобщенного критерия наличия конгломератов предлагаем использовать отношение  $K = N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}$ . Проиллюстрируем вычисление этого критерия на простейшем примере. Рассмотрим различные комбинации расположения сферических частиц (табл. 2).

Приведенные комбинации не исчерпывают всех возможных положений частиц, однако иллюстрируют тот факт, что возрастание величины  $K$  свидетельствует об увеличении группировки частиц, образующих конгломерат.

Различные модельные случаи расположения частиц

№ п/п	Конфигурация частиц относительно линии сканирования	Величина $N_{A\alpha\alpha}$	Величина $N_{A\alpha}$	Отношение $K$
1		0	4	0
2		2	4	0.5
3		2	4	0.5
4		3	4	0.75
5		1	3	0.33
6		2	3	0.67

Разработанные количественные соотношения для оценки пространственного расположения частиц были использованы в программе полуавтоматического стереометрического анализа.

### Выводы

Таким образом, в результате проведенных исследований разработана методика полуавтоматического количественного стереологического анализа расположения частиц в матрице и предложены критерии количественной оценки степени связности для удельного числа контактов в каркасной структуре. Критерии базируются на результатах независимых измерений, что позволяет оценить достоверность получаемой информации путем сопоставления величин, найденных независимыми методами. Предложены количественные критерии оценки наличия конгломератов частиц в двухфазной (связанной и изолированной) структуре. Разработаны алгоритм определения этих критериев и программа для его реализации. Предложенные методики использованы для количественной оценки влияния параметров производства на структуру твердых сплавов на основе карбида вольфрама.

1. С.А. Салтыков, Стереометрическая металлография. Стереологический анализ материалов, Металлургия, Москва (1976).
2. К.С. Чернявский, Стереология в металлургии, Металлургия, Москва (1977).
3. *Quantitative Microscopy*, McGraw-Hill, New York (1968).



4. *О. Опе*, Теория графов, Мир, Москва (1968).
5. *Е. Underwood*, Quantitative Stereology, Addison-Wesley, New York (1970).
6. *И.Н. Чаторова, К.С. Чернявский*, Структура спеченных твердых сплавов, Металлургия, Москва (1975).

*V.V. Pashinsky*

#### PROCEDURE OF QUANTITATIVE STEREOLOGICAL ANALYSIS TO ESTIMATE RELATIVE POSITION OF PARTICLES IN SINTERED MATERIALS

Quantitative criteria are proposed to estimate particle conglomerates in powder materials. The criteria are developed for combined and isolated structures. An algorithm to determine the criteria has been developed and a program for the algorithm realization has been proposed. The methods have been used for a quantitative estimation of the effect of production parameters on the structure of hard alloys based on tungsten carbide

**Fig. 1.** A plot of  $N_{aa}/Num_A$   $N_{A\alpha\alpha} / N_{A\alpha}$  ratio as a function of contact length for hard alloy of the BK-15 grade

**Fig. 2.** An example of two-phase structure with conglomerates formed (alloy BK-15)