

金属学中的 自射线照相

[苏联] M.E. 德利茨 等 著

欧阳可强 路宝华 译

中国工业出版社

75
780

金属学中的自射线照相

〔苏联〕 M. E. 德利茨 等 著

欧阳可强 路宝华 译

3.00/12



М.Е.Дрил, Э.А.Свидерская, Э.С.Каланер
АВТОРАДИОГРАФИЯ В МЕТАЛЛОВЕДЕНИИ
Металлургиздат Москва 1961

* * *

金属学中的自射线照相

欧阳可强 路宝华 译

*

冶金工业部科学技术情报产品标准研究所书刊编辑室編輯
(北京灯市口71号)

中国工业出版社出版(北京德胜门内大街10号)

北京市书刊出版业营业登记证出字第110号

中国工业出版社第三印刷厂印刷

新华书店北京发行所发行·各地新华书店經售

*

开本 $850 \times 1168 \frac{1}{32}$ ·印张5·字数114,000

1965年6月北京第一版·1965年6月北京第一次印刷

印数0001—3,160·定价(科五)0.70元

*

統一书号: 15165·3872 (冶金 609)

本书介绍用自射线照相方法研究某些金属学问题。扼要地阐述了自射线照相方法的物理原理。

书中着重地介绍了应用自射线照相法研究合金的结晶、变性处理、其中合金元素与杂质的分布等过程与各种因素的关系。

还讨论了用这种方法研究在变形和热处理影响下合金中合金元素的再分布过程。

列出了决定合金中合金元素分布的性质与其室温和高温强度性能之间关系的有关资料。

本书供冶金厂、机械制造厂、科学研究机关的工程技术人员阅读，亦可供大专学校学生参考。

序 言

近年来放射性同位素在技术上的应用获得广泛传播。目前利用“示踪”原子可解决一系列各种各样的科学和技术问题。以各种元素的放射性辐射对照相乳胶的相互作用为基础的自射线照相法，是把放射性同位素用于研究目的的有效方法之一。由于这种方法的灵敏度高，并且可探索一定同位素在各种组织变化过程中的性状，苏联和国外不仅在试验室研究中，而且在工厂条件下进行的研究中都成功地应用着自射线照相法。

用自射线照相法解决的主要的金属学问题涉及结晶、变性处理及合金元素和杂质在合金中的分布以及它们在各种变形和热处理条件下的再分布过程。

本书系统地阐明了作者在苏联科学院冶金研究所进行的已经发表过的研究成果和试验工作。本书自然不能包括用自射线照相法进行的所有研究工作，但是书中却反映了在金属学中利用这种方法的基本方向。

第一章讨论自射线照相法的理论基础、最常用的同位素的操作实践、为得到粗视和显微射线照片的试样制备方法。还阐述了用自射线照片的光度测量方法定量地评定金属与合金组织中的显微不均匀性的原理。

第二章阐述用这种方法研究铸造材料中的结晶过程及合金元素和杂质的分布。讨论合金的显微不均匀性与其在结晶期间的冷却条件的关系，并且确定合金的冷却速度、显微不均匀性和性能之间的关系。还列出了有关合金成份与其中合金元素的分布性质之间的关系的数据。

第三章讨论与在变形及热处理的影响下合金元素和杂质的再分布有关的问题。讨论在室温和高温时合金元素再分布的性质与合金性状之间的联系。引出有关确定金属的扩散和自扩散参数的研究数据。

07939

目 录

序言

第一章 自射线照相方法	1
方法的物理基础	1
放射性试样的制备	5
自射线照片的获得	14
方法的分辨能力	21
合金组织不均匀性的定量评定原理	24
第二章 铸造材料中的结晶过程及合金元素和 杂质的分布研究	35
结晶过程	35
合金组织的变性处理	44
合金的粗视和显微不均匀性	52
冷却速度与合金的显微不均匀性之间的关系	70
合金成分与合金元素分布性质之间的关系	86
第三章 在变形和热处理的影响下合金元素在合金中的 再分布研究	101
在变形的影响下合金元素在合金组织中的再分布	101
热处理时合金元素在合金组织中的再分布	107
合金退火时元素的分布	108
金属高温加热时杂质的性状	127
合金淬火和回火时元素的分布	134
金属与合金的晶界和晶内扩散迁移率	142
参考文献	150

第一章

自射綫照相方法

方法的物理基础

人工放射性現象为把示踪原子用于各种研究目的开辟了广阔的前景。

示踪原子法以某些有着和普通稳定同位素性质相同的化学性质的元素具有放射性輻射为基础。记录这些放射性輻射即可探索在各种化学和物理过程中单独一种原子的性状[1、2、3]。

已知有三种在放射性元素衰变过程中伴生的放射性輻射—— α 、 β 和 γ 輻射。它们的本质不同，而且它们和照相乳胶的相互作用也不同。射綫照相和自射綫照相法就是以放射性輻射的这种性质为基础。

这两种方法的区别是在第一种情况下輻射源处在試样外面，而自射綫照相法则必定是放射性輻射源处在被研究的試样里面。

自射綫照相法分为接触自射綫照相法和远距离自射綫照相法两种。前者系通过試样与照相乳胶直接接触而得到影像，而后者系用特殊设备把試样的放射性輻射聚焦在照相胶片上。

放射性輻射对照相乳胶的作用强度依射綫种类和能量的不同而不同。每一个最小的放射性粒子都向所有方向放射射綫。射綫的作用半径等于粒子在给定介质中的射程。在被乳胶层吸收的射綫能量足以使卤化銀晶粒活化的乳胶部位可发现变黑情况。

图1以图解的方式表示 α 、 β 和 γ 射綫与照相乳胶相互作用的性质。半径最小的圆周表征 α 粒子的射程，围绕A、B和C点

的圓周表示 β 射綫的有效射程，而相当于最远的 D 点的射程則表示 γ 射綫的有效射程〔4〕。这时，只有在如同图2所示，如果放射性粒子在被研究的材料中的射程 R 大于这个粒子到乳胶的距离 h

的条件下，放射性輻射才能对照相乳胶起作用〔5〕。

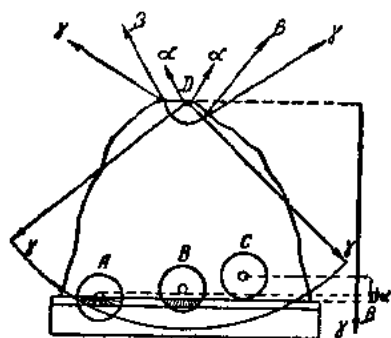


图1 α 、 β 和 γ 射綫与照相乳胶相互作用的示意图

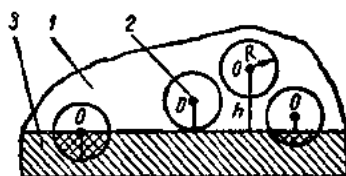


图2 得到自射綫照片的示意图
1—試样；2—輻射源；3—乳胶

如果遵守这个条件，那么显然在粒子的射程值最小时将得到最大的影像清晰度，因为在此情况下，来自距离表面比較远的試样点的散射輻射的影响减小。但是甚至在像是使用軟 β 同位素这种比較有利的条件下，或多或少由于以某种角度投射到試样——乳胶接触面上的射綫流的作用也能得到自射綫照相印迹。因此，分布在距离表面不远处的直径极小的放射性粒子的影像尺寸很大。在利用輻射較硬而且相应地粒子射程很大的同位素时这种不良后果更甚。

虽然上述現象也会給元素分布的图样带来一定的誤差，但是在某些情况下这种性能会給出比真实影像大几倍的影像，从而可以在自射綫照相上显示出用一般金相分析法不能得到的組織細節。

众所周知，放射性輻射的照相效应主要取决于它的致电离本领和粒子的射程。因此，得到的影像（自射綫照片）的清晰度将首先取决于放射性輻射的性质。为了实现自射綫照相，最有效的将是放射 α 輻射的同位素。

按照文献資料，在照相作用方面 α 同位素比 β 和 γ 同位素分

別強1000和100000倍。

然而， α 輻射多半為重的和天然放射性同位素所具有。這點限制了它們在自射綫照相方面的應用。放射 γ 輻射的同位素的照相效應如此微弱，以至在自射綫照相方面應用它們，會在試驗上遇到極大的困難，因而只有在極端必要的情況下採用。

對於自射綫照相來說，應用放射 β 或 $\beta + \gamma$ 混合輻射的同位素最適合。有大量工業上很重要的元素具有這種同位素。

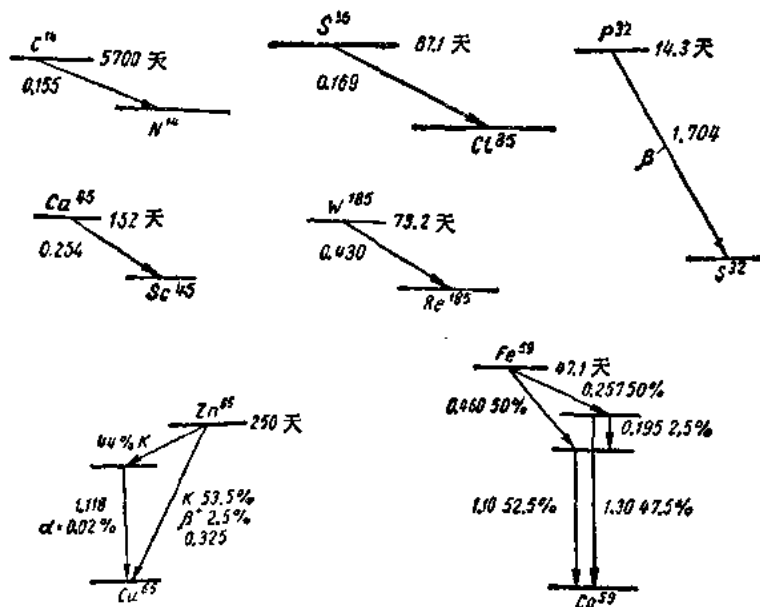


圖 3 放射性同位素的衰變圖

應當考慮到，由於 β 同位素具有不連續的 β 粒子的能譜和射程，它們的照相作用主要取決於這個譜的形狀。

顯然，能譜不長以及表示大多數粒子最大幾率的能量最大值不大，就決定了它們的貫穿能力較小。這是對自射綫照相有利的因素。

在選擇為進行自射綫照相研究用的同位素時，半衰期具有重大意義。不同放射性同位素的半衰期可能從幾分之一秒到幾十億

放射性同位素的性质

表 1

元素	同位素	原子序数	半衰期	衰变类型	β 谱的上限 E_{β} , 兆电子伏	β 谱的平均 能量 $\bar{E}_{\beta}$, 兆电子伏	给定部分 β 谱的衰 变, %	γ 光子的能量 E_{γ} , 兆电子伏	在铅中的最 大射程值 R_m , 毫克/ 厘米 ²
碳	C ¹⁴	6	5700年	$\bar{\beta}$	0.155	0.05	100	—	20
硫	S ³⁵	16	87 1天	$\bar{\beta}$	0.169	0.055	100	—	21
磷	P ³²	15	14.3天	$\bar{\beta}$	1.704	0.695	100	—	770
钙	Ca ⁴⁵	20	152天	$\bar{\beta}$	0.254	0.0746	100	—	60
钨	W ¹⁸⁵	74	73.2天	$\bar{\beta}$	0.43	—	100	—	120
铁	Fe ⁵⁹	26	47.1天	$\bar{\beta}, \gamma$	0.257; 0.460	—	50 50	1.3; 1.1; 0.195	— 130
铈	Ce ¹⁴¹	58	33.1天	$\bar{\beta}, \gamma, e$	0.581; 0.442	—	30—70	0.1457	180
镍	Ni ⁵⁹	28	7.5×10 ⁴ 年	$\bar{\beta}, \beta, \gamma$	0.069	—	—	0.007; 0.075	—
钼	Mo ⁹⁹	42	2.8天	$\bar{\beta}, \gamma, e$	0.445	—	25	0.367; 0.780	—
铬	Cr ⁵¹	24	27.75天	β, γ, e +	—	—	—	0.33	—
锌	Zn ⁶⁵	30	250天	β, β, γ	0.325	—	2.5	1.118	—

年。

在选择試驗方法和各研究阶段的延續時間时以及从遵守技术安全的观点看来都必须考虑半衰期的长短。

为了实用的目的，最好是在等于4到7个半衰期的時間內，也就是相当于同位素的放射性强度降低到原来强度的 $\frac{1}{16}$ — $\frac{1}{128}$ 的時間內利用該同位素。

在表1示出冶金研究中最常用的同位素的基本特性。在图3給出一些元素的放射性衰变图^[6]。按照所示数据，碳(C^{14})、鈣(Ca^{45})、硫(S^{33})、鎢(W^{185})和磷(P^{32})的放射性同位素具有最适于用来进行自射綫照相的綜合性质。

下面对方法問題的闡述将主要涉及在金属学中获得特别广泛应用的 β 自射綫照相。

放射性試样的制备

可以用不同方法使金属被放射性同位素活化^①，其中应用最广的是把放射性同位素加入熔化的金属中和用核粒子流辐照試样的方法。

在許多情况下，可以用把放射性同位素电镀在被研究的試样上面的方法或是用使試样由气相饱和以放射性同位素的方法以及使放射性同位素在真空中蒸发从而沉积在試样上面的方法使金属活化。

此外，为了达到这种目的还可应用在反应过程中使放射性同位素还原的各种化学反应。

許多以金属态供应的同位素要放在由基体金属制成的样品管里面加入熔化的金属中，这样即可保証元素在合金中迅速而完全地溶解。曾經用这种方法以放射性同位素 Ca^{45} 、 Fe^{59} 、 Zn^{65} 使鋁及鎂合金活化^[7, 8]；以 W^{185} 、 Ni^{59} 、 Si^{31} 、 Ca^{45} 使鉄合金活化^[9]；

① 活化——使材料变为能够放射放射性辐射的过程。

以 W^{185} 使鎳合金活化^[10]。

有时是以由同样的、但是非放射性的元素或是和某种其它元素制备的中间合金的形式将放射性同位素加入。这种中间合金是用使元素熔化或烧结的方法制备的^[9, 11]。例如，为了把放射性磷加入钢中而把放射性红磷和非放射性磷以 1:10 的比例混合，然后和阿姆可铁碎屑 (1:50) 烧结。

把以各种化学化合物状态供应的同位素引入合金中，是以不同方法进行的。例如，为了使放射性的氧化铬和氧化钼溶解，要将它们在熔化过程中用铝直接还原成纯金属^[9, 12]。在许多情况下，用碳使铁合金活化，是以往渗碳剂中加入放射性盐 $BaC^{14}O_3$ 从而使阿姆可铁碎屑中间渗碳的方法进行的^[13, 9, 14]。为了把放射性硫引入钢中，可将放射性盐 $Na_2S^{35}O_4$ 的水溶液蒸干，然后把它以 1:10 的比例与石英粉混合，放在玻璃安瓿中引入炉料^[9]。可以把放射性硫以放射性和非放射性硫化铁的混合物形式放在由纯铁制成的样品管里引入熔化的钢中^[15]。

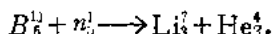
利用辐照使金属活化的方法也获得十分广泛的应用。这种过程是在原子反应堆中通过核粒子（中子）流对被研究试样起作用的途径实现的。由于在被研究材料中发生核反应的结果而形成在其成份中所含元素的同位素。只有在同位素的半衰期长短或核反应的有效截面^①差别很大的情况下才能在自射线照片上将各种放射性同位素彼此辨别清楚。这时即可在同一个试样上研究几种元素的分布。

采用辐照法可以利用短寿命同位素进行研究工作，并且在试验实践中可以免去一些对健康有害的操作；如像放射性试样的熔炼和加工（锯、磨、抛光）。但是采用这种方法要求备有辐射源并且要求使用高纯度的材料，否则就有使各种杂质活化的可能。因即便有极微量的活化杂质存在，即可使照相乳胶变黑而改变被研究元素的真实分布图样。

① 核反应的有效截面表征在轰击粒子通过靶时实现给定反应的几率。

在由于被研究元素的半衰期极短以至不可能进行研究，但在它受到辐照时由于核反应的结果而产生能被照相乳胶记录下来的新辐射的情况下也可应用辐照法。

曾經用这种方法研究硼 ($T=0.012$ 秒) 在鉄硼合金中的分布性质^[16]。在用对乳胶的作用很弱的慢中子辐照合金时，发生下列核反应：



由于反应的结果而形成的能量为 1.5 兆电子伏的 α 粒子 (He_2^4) 很容易被记录在照相乳胶上。

在要求把放射性物质镀在试样表面上的情况下，可以采用电镀放射性同位素的方法。或是以利用不溶阳极和含大量放射性物质的电解液或是反过来，用普通电解液和由放射性金属制备的阳极相配合的方法进行试样的放射性同位素电镀。使用这种方法可以在极薄的表层中得到极高的放射性同位素浓度，因而可以在消耗比较小量放射性物质的情况下得到较大的效果。电镀放射性同位素的方法被用来研究扩散过程和摩擦面磨损过程。但是这种方法的应用受到有些金属不能用电镀法镀复以及难于得到足够厚的优质镀层的限制。

在真空中使放射性同位素蒸发，从而使它沉积在试样上面的方法获得广泛传播。实际上这一过程是以如下方式进行的：用在其壁上悬挂被研究试样的容器把放在电加热元件中的放射性同位素盖好，然后在此系统中造成比较高的真空 (10^{-5} 毫米水银柱数量级)。使电流通过加热元件，从而得到保证放射性同位素以必要的速度蒸发的温度。结果在试样表面上形成一层放射性物质。这种方法简单，产率高，几乎适用于所有元素，其中包括除去熔点极高的物质（例如钨）以外的非金属。蒸发法的缺点是很难在试样表面上造成足够均匀的放射性层。

也可以用由元素的放射性盐进行化学还原，例如化学镀银或镀镍的方法使材料复以放射性同位素。

在许多情况下也可以用使试样饱和以放射性元素的方法（例

如渗碳法)把放射性层鍍复在其表面上。

选择哪种使試样活化的方法,取决于研究的条件和任务。

到目前为止,使用最普遍的是把放射性同位素引入熔化的金属中使材料活化的方法。实验表明,如果在1公斤液态金属中引入1—5毫居里純 β 辐射体或是高达100毫居里像是鉻(Cr^{51})这样的 γ 辐射体,即可使合金得到足够的放射性。在引入鉻(Cr^{51})的情况下,高的放射性强度与 γ 辐射的照相效应极弱,而且要采用非常薄的試样($\sim 10-20$ 微米)有关。

可以用下列公式計算同位素的放射性强度值:

$$I = \frac{1 \times 10^7 \times Q}{\tau \varphi a \rho_{\beta, \gamma} f s h - \frac{1}{2}} \text{毫居里} \quad (1)$$

式中 I ——引入的放射性同位素的强度,毫居里;

1×10^7 ——为造成黑度为0.5—0.6、从而保証最大分辨能力所需的、在1平方厘米普通“XX”型 x 光胶片表面上的脉冲数[17];

τ ——时间;

φ ——考虑到放射性同位素同化的系数;

a —— 3.7×10^7 ——放射性强度为1毫居里的同位素每1秒钟的衰变数;

$\rho_{\beta, \gamma}$ ——同位素的衰变系数;

f ——試样面积;

s ——自吸收系数;

h ——試样厚度;

$\frac{1}{2}$ ——考虑到在放射性衰变过程中落在乳胶上的粒子数的系数。

在使用灵敏度較低的MP和MK型核子照相乳胶的时候,为造成黑度为0.5—0.6所需在每1平方厘米照相乳胶表面上的脉冲数增加到 1×10^8 ,这将使曝光时间增长5—7倍或使放射性

强度相应增加。

合金的放射性强度与合金中放射性元素的同化系数有关。后者决定于所得合金的总放射性强度与由放射性制剂而代入合金中的元素的放射性强度的比值，它可由下列公式计算^[8]：

$$\alpha = \frac{aQ}{a'q} \times 100\% \quad (2)$$

式中 a ——合金的比放射性强度，脉冲/分·克；

a' ——放射性同位素的比放射性强度，脉冲/分·克；

Q ——合金的重量，克；

q ——引入合金中的放射性同位素的重量，克。

可以用放射性测量法确定同化系数。这种方法比普通化学分析法的灵敏度和可靠性高。通常使用其构造已经不止一次地在文献中有所介绍的B型放射性测量仪（图4）测量放射性强度。测定合金的绝对比放射性强度，在试验条件上有很大困难。

可以在液体溶液中也可以在固态下（块状或粉状）进行试样放射性强度的测定。但是后一方法具有很大缺点，它往往不能保证放射性物质在被研究物体中的分布足够均匀。此外，在试样尺寸不大而放射性强度很高的情况下，例如在测定放射性制剂的相对强度时，很难得到严格固定的形状。

与此同时，在平行测定合金及放射性制剂的放射性强度时，极为重要的是造成这样的条件，即除去几何及物理因素不变以外，还要使粒子的计数率达到一定的水平。后一要求是由这种情况决定的：在辐射强度很大时发生脉冲未被完全记录的情况。这点使得有必要对影响测量精确度的误差引入适当的修正。因此，最好是用放射性强度数量级相同的试样进行放射性强度的相对测量。为此，必须把被研究的试样转化成溶液，从而保证放射性物质在体积中分布均匀以及几何形状和到计数管的距离不变。通过将溶液适当稀释的方法可很容易地将放射性强度各异的试样的计数率加以调节，这点在随后的放射性强度计算中应估计及。

在进行放射性测量分析时，采用按照 β 辐射的测量比较可

靠，因为这时能够保证比较高的计数效率，而且通过选择溶液深度或试样厚度使之显著大于 β 粒子的射程的方法（厚层法）容易造成固定不变的计数条件。然而这时必须考虑吸收现象。

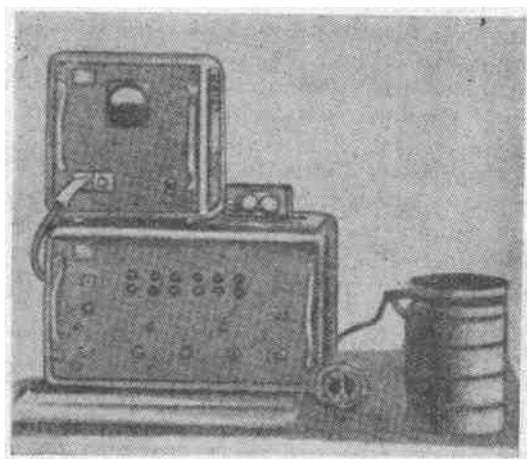
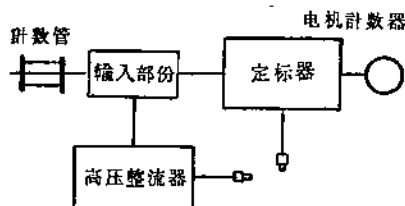


图 4 B型放射性测量仪

用下列公式确定合金及制剂的比放射性强度：

$$a = \frac{NV}{kk' * p} \qquad a' = \frac{N'V'}{kk' * p'} \qquad (3)$$

式中 N ——合金溶液的计数率，脉冲/分；

N' ——制剂溶液的计数率，脉冲/分；

p ——溶解的合金重量，克；

p' ——溶解的制剂重量，克；

* 原书误为 k_1 。——编者

V ——合金溶液的体积，厘米³；

V' ——制剂溶液的体积，厘米³；

k ——考虑到同位素衰变的系数；

k' ——考虑到放射性强度测量特点的系数。

把用公式（3）计算的比放射性强度值代入上面导出的关系式（2），即可确定给定元素的同化系数。

由关系式

$$C = a \times C' \quad (4)$$

确定合金中元素的真实含量，

式中 a ——同化系数；

C' ——按炉料计算的合金中元素含量。

在计算3吨工业熔炼实验镁合金的炉料时，根据利用上述方法进行镁合金的分析数据，能够以足够的精确度估计钙的烧损百分数，并且为用光谱法测定镁合金中的钙制备标准样品。

把用放射性同位素活化的液态熔融合金依研究目的的不同浇铸成一定的形状。铸成的锭可以直接在铸态下进行研究或是经受随后的热处理或机械加工。

为了得到说明放射性元素在合金、铸锭或变形坯料的粗视体积中分布图画的粗视射线照片，要把它们锯成其被研究表面经受适当加工的粗视切片。用号数不同的砂纸把切片磨光；为了避免放射性粉尘脱出，应使切片表面受到充分的浸润（通常用煤油）。这时必须十分注意粗视磨片表面的加工质量。有缺陷存在可使元素分布的真实图画受到歪曲，这往往会导致对自射线照片的不正确解释。

М.Б.比维尔（Бивер）^[18]举出这样一个例子：当研究人员在含放射性磷的钢锭上面靠近缩孔处发现比较强的黑度时，就作出错误的认为磷主要集中在这些部位的结论。后来，在另外一次用特殊试验法完成的工作中查明，靠近缩孔处胶片黑度的增加与钢锭的表面缺陷有关^[19]。

由于有些材料和照相乳胶接触时能够使它变黑（伪效应），