



AUTORADIOGRAFIA APLICADA AO CONTRÔLE DE PROCESSOS METALÚRGICOS

WLADIMYR SANCHEZ

PUBLICAÇÃO IEA N.º **172**
Agosto — 1968

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SÃO PAULO — BRASIL

AUTORADIOGRAFIA APLICADA AO CONTRÔLE DE PROCESSOS METALÚRGICOS

Wladimyr Sanchez

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil

Publicação IEA Nº 172
Agosto - 1968

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof. Uriel da Costa Ribeiro

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof.Dr. Luis Antonio da Gama e Silva

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof.Dr. José Moura Gonçalves	}	pela USP
Prof.Dr. José Augusto Martins		
Prof.Dr. Rui Ribeiro Franco	}	pela CNEN
Prof.Dr. Theodoreto H.I. de Arruda Souto		

Divisões Didático-Científicas

Divisão de Física Nuclear -

Chefe: Prof.Dr. Marcello D.S. Santos

Divisão de Radioquímica -

Chefe: Prof.Dr. Fausto Walter de Lima

Divisão de Radiobiologia -

Chefe: Prof.Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Divisão de Metalurgia Nuclear -

Chefe: Prof.Dr. Tharcísio D.S. Santos

Divisão de Engenharia Química -

Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Engenharia Nuclear -

Chefe: Engº Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -

Chefe: Engº Azor Camargo Penteado Filho

Divisão de Física de Reatores -

Chefe: Prof. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -

Chefe: Prof.Dr. Rui Ribeiro Franco

AUTORADIOGRAFIA APLICADA AO CONTRÔLE DE PROCESSOS METALÚRGICOS ⁽¹⁾

WLADIMYR SANCHEZ ⁽²⁾

RESUMO

A técnica da autoradiografia oferece grandes vantagens no estudo de ligas metálicas, particularmente quando os diferentes metais constituintes não são uniformemente distribuídos mas tendem a se segregar.

A Divisão de Operação e Manutenção de Reatores do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, desenvolve técnicas de macro-autoradiografia, para investigar problemas, relacionados à distribuição de urânio e outros elementos ativos em espécimes metálicos. As autoradiografias obtidas, possuem alta resolução e destinam-se às medidas quantitativas. O endurecimento do filme produzido pelas partículas alfa e beta emitidas pelo urânio, foi medido com o auxílio de um microdensitômetro. Comparando-se os diferentes graus de escurecimento do filme, estudou-se a distribuição do urânio na liga Al-U-Si.

Neste trabalho o autor descreve a técnica adotada, ilustrada com diversas autoradiografias. Conclui que o baixo custo, a sensibilidade do método e a facilidade de interpretação tornam este método de ensaio muito útil ao controle de fabricação.

1. INTRODUÇÃO

A técnica de autoradiografia oferece grandes vantagens no estudo de ligas metálicas, particularmente quando os diferentes metais constituintes não são uniformemente distribuídos, mas tendem a se segregar. Tal técnica de ensaio baseia-se no efeito produzido pela interação da radiação emitida pelo constituinte radioativo da liga com o filme radiográfico. Quando revelado e interpretado, o filme permite localizar o elemento radioativo presente na liga ensaiada.

Existem três métodos para a preparação de uma amostra a ser ensaiada por autoradiografia: ¹

- irradiação da amostra em reator nuclear;
- introdução do elemento já radioativo, antes de fundir a liga cuja distribuição se deseja estudar;
- por processos de eletrodeposição ou reações de troca, o elemento radioativo é depositado na superfície do material a ser ensaiado.

Os dois primeiros métodos são mais empregados no controle de fabricação, enquanto que o terceiro, no estudo de corrosão, difusão etc.

O método de irradiação em reator nuclear é usado quando a amostra apresenta grande seção de choque de ativação para nêutrons térmicos e meia-vida curta, e é vantajoso porque as operações preliminares são realizadas no seu es-

tado natural, isto é, não radioativo. Quando a amostra estiver cortada nas dimensões ideais e polida, ela é introduzida no reator e irradiada por tempo previamente determinado. Sua ativação pode produzir uma série de isótopos dos elementos que formam a liga. Tendo esses isótopos meias-vidas diferentes, a atividade de um deles será maior, daí escolhermos o momento e a duração da exposição, o que aliás é interessante para a irradiação de aço ². O ensaio por autoradiografia feito após a retirada da amostra de aço do reator, mostrará a distribuição de manganês devido a grande atividade inicial do mesmo. Decorridas cerca de 15 h, quando a atividade do manganês for consideravelmente reduzida devido a meia-vida ser de 2,5 h, inicia-se o estudo da distribuição de arsênico que apresenta meia-vida 11 vezes maior (As-76, $T_{1/2} = 27$ h) e, posteriormente, analisa-se o fósforo cuja meia-vida é de 14 dias.

As preparações preliminares do segundo processo são feitas com material radioativo de meia-vida longa compara com o tempo de preparação da amostra, a fim de que, ao ser iniciado o ensaio, apresente atividade significativa. A adição do elemento radioativo na liga assegura somente a presença do isótopo desejado com atividade conhecida.

2. MACRO-AUTORADIOGRAFIA NO ESTUDO DA DISTRIBUIÇÃO DO URÂNIO EM LIGA DE AL-U-Si. ³

Foi evidenciado que o método de ensaio por autoradiografia é bastante útil em problemas metalúrgicos. Os recursos desta técnica podem ser explorados na obtenção de resultados quantitativos.

(1) Contribuição Técnica n.º 772. Apresentada ao XXIII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais; Belo Horizonte MG, julho de 1968.

(2) Lic. em Física, Supervisor das Operações do IEAR-1. Divisão de Operação e Manutenção de Reatores, Instituto de Energia Atômica - São Paulo, SP.

vos. As dificuldades que impedem uma avaliação precisa dos fatores que influenciam o fenômeno de interação entre a emulsão radiográfica e a radiação presente na amostra, têm restringido o uso da técnica de autoradiografia em trabalhos quantitativos. A autoradiografia quantitativa estabelece uma correspondência unívoca entre a concentração do isótopo presente em determinada área da amostra e o enegrecimento de uma área do filme.

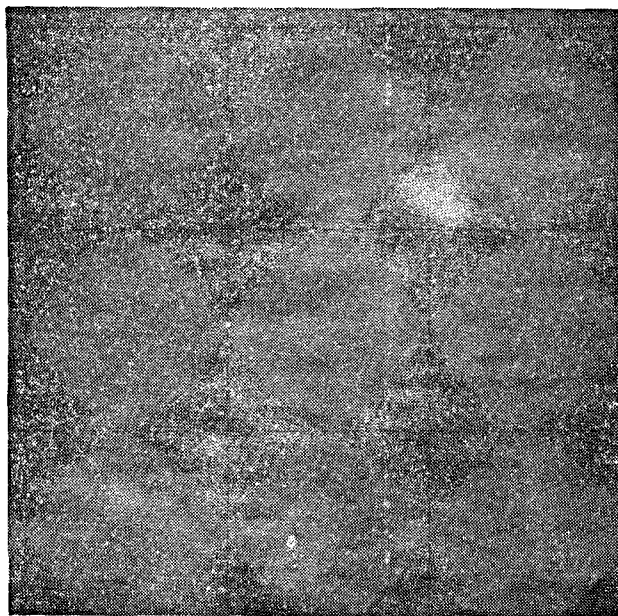


Fig. 1 — Distribuição de urânio na liga Al-U-Si; pontos escuros — presença de urânio; pontos claros — presença de Al-Si.

Para a análise das autoradiografias obtidas foi avaliada a concentração de urânio de uma dada área em relação às demais (Fig. 1). A razão é determinada comparando-se o efeito fotográfico produzido pela radiação do urânio sobre várias áreas da emulsão. O escurecimento do filme é medido com um densitômetro equipado com fenda suficientemente estreita que permite o exame de pequenas regiões da autoradiografia. Obtém-se evidentemente a densidade óptica média da área que está sendo varrida pela janela do densitômetro. Por esse método é possível obter-se medidas absolutas calibrando a emulsão radiográfica com fontes padrões e determinando a relação entre exposição e a correspondente densidade óptica. Das medidas de densidades ópticas, calcula-se a intensidade da radiação emitida pelo isótopo ativo na liga, ponto por ponto.

Nosso objetivo consiste apenas na verificação da distribuição de urânio na liga Al-U-Si e é, portanto, suficiente uma medida relativa.

As técnicas adotadas nas macro-autoradiografias são diretas, isto é, não requerem conheci-

mentos profundos quanto às características e propriedades das emulsões usadas. Obtivemos boa resolução correlacionando os seguintes fatores:

1. Contato uniforme e rígido entre amostra e emulsão radiográfica;
2. Amostra constituída por finas lâminas da liga em questão;
3. Emulsão radiográfica de grão fino com alta percentagem de haletos de prata;
4. Atividades da amostra conhecida, energias e meias-vidas dos elementos radioativos bem determinadas;
5. Tempo de exposição;
6. Auto-absorção e espalhamento da radiação na amostra;
7. Temperatura e umidade no local de ensaio;
8. Natureza do processamento químico, temperatura e tempo de revelação;
9. Radiação de fundo ("background") proveniente dos raios cósmicos e radioatividade natural do ambiente.

Os fatores 7, 8 e 9 produzem a chamada resposta fotográfica de "background" e seus efeitos sobre a autoradiografia foram considerados mínimos e constantes. A densidade óptica de "background" no filme Blue Brand, utilizado em alguns ensaios, foi de 0,22 e no filme tipo M de 0,06.

3. CONDIÇÕES DE EXPOSIÇÃO

No preparo da amostra a escolha de sua espessura é de importância, uma vez que direta ou indiretamente ela afeta os outros fatores que envolvem a autoradiografia (Fig. 2). Resultados experimentais obtidos levaram-nos a adotar finas lâminas porque a resolução melhorava consideravelmente à medida que a espessura da amostra diminuía.

Uma fonte pontual e isotrópica de radiação monoenergética, quando colocada em contato íntimo com a superfície da emulsão radiográfica, produz imagem aproximadamente circular, cujo raio é da ordem do alcance da partícula da emulsão. Quanto mais baixa a energia da radiação emitida, isto é, quanto menor seu alcance e mais próximo estiver a fonte da superfície da emulsão, melhor aparência fotográfica será obtida no ensaio.

Os três principais tipos de radiação produzem diferentes efeitos fotográficos. Por exemplo, uma partícula alfa de 4,18 MeV, emitida pelo Urânio-238, tem alcance de 13μ no brometo de prata e no processo de interação ela perde 0,27 MeV de energia por microm. O alcance de uma partícula beta de 0,302 MeV emitida pelo Pa-231 é de 360μ e representa uma perda de energia de $0,83 \cdot 10^{-3}$ MeV/ μ . A ação fotográfica dos raios

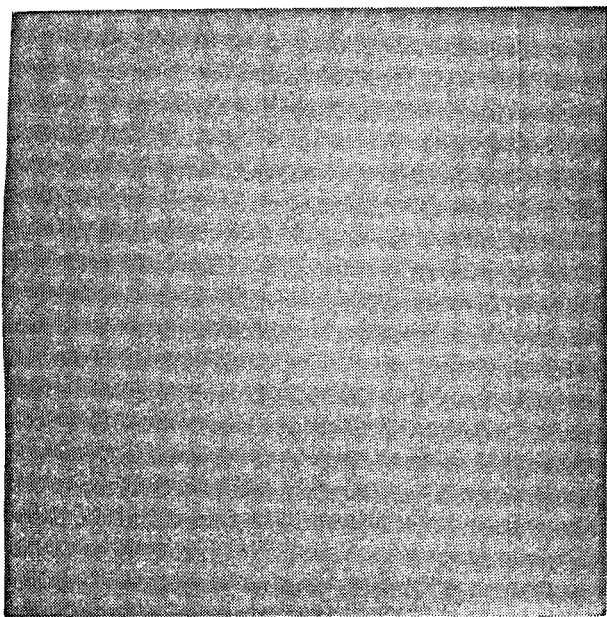


Fig. 2 — Baixa resolução devido a espessura da amostra — espessura da amostra 2,5 cm — filme tipo M — densidade óptica 0,8 — resolução pobre devido ao espalhamento da radiação beta e gama no interior da amostra.

gama é muito pequena e sua influência só deve ser levada em conta quando as atividades envolvidas forem grandes. Na realidade o efeito fotográfico produzido pela radiação beta é sempre maior que o calculado porque o espectro de energia dessa radiação é contínuo e existem energias menores que a máxima.

O material empregado no presente estudo é uma liga de alumínio com 20% (em peso) de urânio e 0,8% (em peso) de silício. O urânio contido na liga é constituído por três isótopos: 99,27% de U-238, 0,72% de U-235 e 0,01% de U-234, que decaem para isótopos do tório por emissão de partículas alfa. Os isótopos do tório são instáveis, possuem meia-vida curta comparado com seus formadores e emitem radiação beta.

Resultados de cálculo efetuado mostram o número de partículas alfa e beta emitidas durante as desintegrações ocorridas em um grama de urânio por segundo, conforme tabela I. Os raios gama não foram aqui considerados por ser mínima a emissão dos mesmos e reduzido o seu efeito fotográfico. A partir dessa tabela determina-se o tempo de exposição para cada ensaio, avaliando-se o número de partículas emitidas pela massa de urânio presente na liga.

A radiação que age sobre as diferentes camadas da emulsão é constituída por partículas alfa e beta. A velocidade da emulsão em relação a essas partículas é função complexa de vários fatores tais como sensibilidade intrínseca dos grãos, tamanho do grão, espessura da camada, concentração de brometo de prata etc. A sensibilidade aumenta quando a energia das partículas alfa e beta diminui. Sem entrarmos em pormenores a respeito da composição das emulsões radiográficas é suficiente lembrar que quanto maior o conteúdo de brometo de prata, maior será a probabilidade de interação com as partículas.

TABELA I — Número de partículas alfa e beta emitidas durante as desintegrações ocorridas em um grama de urânio por segundo.

Isótopo	Meia-Vida $T_{1/2}$	Tempo após purificado o Urânio					
		0		1 ano		15 anos	
		α	β	α	β	α	β
U-238	$4,49 \times 10^9$ anos	$1,23 \times 10^4$	—	$1,23 \times 10^4$	—	$1,23 \times 10^4$	—
Th-234	24,1 dias	—	—	—	$1,23 \times 10^4$	—	$1,23 \times 10^4$
Pa-234	1,18 m	—	—	—	$5,16 \times 10^3$	—	$5,15 \times 10^3$
U-234	$2,48 \times 10^5$ anos	—	—	$5,74 \times 10^{-9}$	—	$5,74 \times 10^{-9}$	—
U-235	$7,13 \times 10^8$ anos	$5,77 \times 10^2$	—	$5,77 \times 10^2$	—	$5,77 \times 10^2$	—
Th-231	25,6 horas	—	—	—	$5,77 \times 10^2$	—	$5,77 \times 10^2$
Pa-231	$3,43 \times 10^4$ anos	—	—	$4,9 \times 10^{-5}$	—	$4,9 \times 10^{-5}$	—
U-234	$2,48 \times 10^5$ anos	$1,25 \times 10^4$	—	$1,25 \times 10^4$	—	$1,25 \times 10^4$	—
Th-230	8×10^4 anos	—	—	0,0108	—	0,165	—
Total	—	$2,54 \times 10^4$	0	$2,54 \times 10^4$	$1,34 \times 10^4$	$2,54 \times 10^4$	$1,34 \times 10^4$

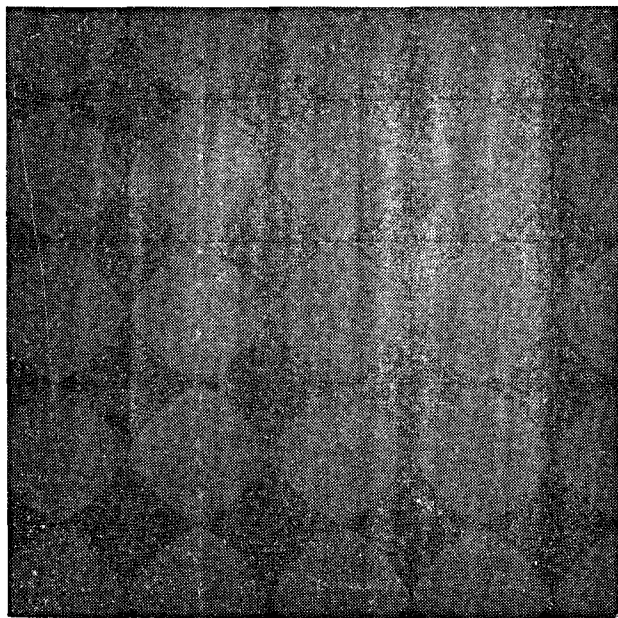
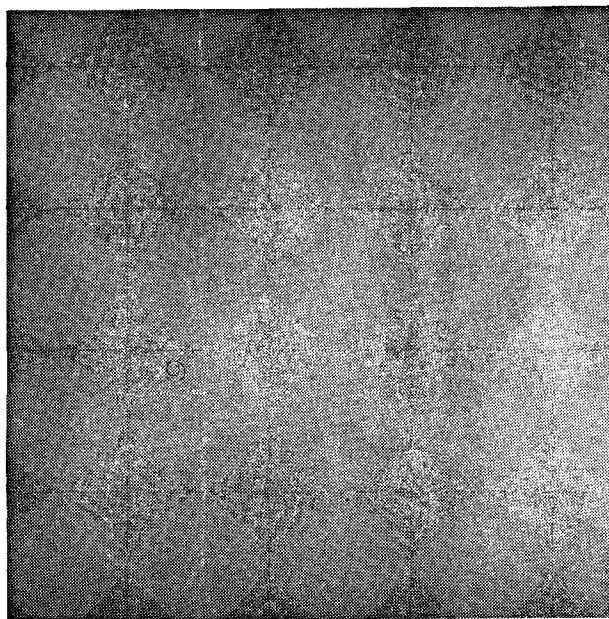


Fig. 3 — Influência do tipo de filme na resolução. *Superior* — Autoradiografia de uma amostra da liga Al-U-Si: espessura: 0,35 mm — Tempo de exposição: 42 h. densidade ótica: 0,9 — Filme tipo M, espessura da emulsão: 18 microns. *Inferior* — Autoradiografia da mesma amostra da liga Al-U-Si; espessura: 0,35 mm — Tempo de exposição: 6 h., densidade ótica: 0,8 — Filme Blue Brand, espessura da emulsão: 28 microns

Com emulsão espessa, a imagem não é tão nítida como a obtida com emulsão fina, visto sofrer a radiação espalhamento nas suas diversas camadas. Contudo não deve ser, também, muito fina para evitar que partículas de alta energia possam atravessá-la sem impressionar os grãos de prata. A espessura ideal é conseguida analisando-se dois fatores opostos: tempo de exposição e

alta resolução. O filme Blue Brand possui uma camada de emulsão da ordem de 28 microns e grãos mais grossos que o filme tipo M, cuja camada é da ordem de 18 microns. A figura 3, ilustra a diferença de resolução obtida ensaiando-se a mesma amostra com os dois filmes.

O método de macro autoradiografia possui fatores interdependentes, muitas vezes contraditórios, que devam ser cuidadosamente analisados. Cada trabalho exige uma análise cuidadosa das condições e grandezas envolvidas para a obtenção de resultados satisfatórios.

4. INFLUÊNCIA DA ENERGIA DAS PARTICULAS NA EXPOSIÇÃO

O cálculo do tempo necessário para que a amostra em contato com o filme possa escurecê-lo corretamente, exige a análise das diferentes energias das partículas incidentes na emulsão.⁴ O urânio-238 decai para o Th-234 por emissão de partículas alfa com energia de 4,18 MeV e por raio gama de 0,045 MeV. O tório formado é instável, decai para o Pa-234 por emissão de partículas beta com 0,205 MeV de energia máxima e raios gama de 0,09 MeV.

O urânio-235 decai para o Th-231 por emissão de duas partículas alfa de energias 4,58 MeV e 4,40 MeV. O Th-231 decai para o Pa-231 por emissão de uma partícula beta de energia 0,302 MeV e por raios gama de energias 0,03, 0,022 e 0,3 MeV. O urânio-234 decai para o Th-230 por emissão de partículas alfa de energia 4,7 MeV.

Essas são as energias envolvidas no processo de interação da radiação com a emulsão. Ionizam o filme somente as partículas alfa e beta emitidas pela camada superficial da amostra em contato com a emulsão, as partículas emitidas pelas camadas internas são absorvidas na própria liga.

Os primeiros ensaios foram realizados com diversas espessuras de corpo de prova para se estudar a resolução e determinar a espessura ideal. A melhor resolução foi conseguida com espessura de 0,35 mm. No cálculo da exposição levamos em conta o número de partículas alfa e beta, emitidas por unidade de área da amostra, que chega a emulsão. O formulismo matemático é complexo e por isso optamos pelas fórmulas semi-empíricas e com bons resultados.

No ensaio da liga Al-U-Si, revestida por uma camada de 0,42 mm de alumínio (placa combustível), somente a radiação beta contribui efetivamente para a exposição.

Com filme Blue Brand a densidade de "background" é avaliada em 0,22 e para se produzir densidade radiográfica 0,9 são necessárias 16.10^6 partículas beta por cm^2 de emulsão.

Com filme tipo M a densidade de "background" é avaliada em 0,06 e para se produzir densidade radiográfica 0,8 são necessárias 126.10^6 partículas beta por cm^2 de emulsão.

5. ARRANJO EXPERIMENTAL

Os ensaios por autoradiografia são realizados mantendo-se o filme em contato direto com o material em local onde não penetre claridade, a fim de que os raios luminosos não velem o filme.

Para tal finalidade construiu-se uma câmara de exposição bastante simples e econômica, constando essencialmente de uma caixa de 80 cm de comprimento por 30 cm de largura e 30 cm de altura, forrada internamente com feltro preto impedindo a entrada de luz pelas interfaces. Sendo a espessura do material de aproximadamente 1 cm, seu próprio peso é suficiente para assegurar bom contato com a emulsão radiográfica. Quando boa resolução só fôr obtida com finas lâminas de metal, adiciona-se sobre a amostra um peso suplementar assegurando pressão conveniente sobre o filme. Deve-se evitar forte pressão para que o filme não seja impressionado por efeito mecânico, principalmente quando a amostra não fôr previamente polida e sua superfície apresentar irregularidades.

Os corpos de prova devem ser cuidadosamente examinados antes de colocados sobre o filme na câmara de exposição, para que se verifique visualmente a presença ou não de descontinuidades como, por exemplo, porosidade. Constatamos muitas vezes sobre a autoradiografia manchas provenientes de pequenos pontos de oxidação na amostra, que dificultam a interpretação do ensaio quando não forem previamente eliminados.

A câmara de exposição deve ser colocada em local seco e o intervalo entre exposição e revelação não deve ser grande, para evitar uma imagem latente desbotada. A principal causa é atribuída à umidade relativa da atmosfera sobre a emulsão, onde a presença do oxigênio livre muda a imagem latente, desbotando-a.

6. FONTES DE ERROS EM AUTORADIOGRAFIAS DE METAIS

A perda de detalhes como consequência de uma super-exposição é a principal fonte de erro que surge em autoradiografia de ligas metálicas. O tempo de exposição deve ser cuidadosamente determinado para que os pormenores desejados apareçam nitidamente no filme. É conveniente lembrar, também, que uma área subexposta em

uma autoradiografia não é prova conclusiva de ausência de atividade na porção correspondente do metal. Isto nos leva a executar, na maioria das vezes, duas autoradiografias da mesma amostra com exposições diferentes. Se a exposição normal deixar dúvidas quanto à interpretação, uma segunda exposição, utilizando tempo duas vezes superior ao do primeiro ensaio, deve ser feita. Comparando-se os resultados dos dois, eliminam-se as dúvidas existentes.

Outra fonte de erro surge no ensaio de metais porosos e, neste caso, mesmo que a distribuição do material radioativo na liga tenha se processado de maneira uniforme, o resultado fotográfico poderá dar margem a dúvidas. A radiação sendo menos absorvida nas camadas de ar existentes nos poros do que no metal, acarretará no filme fotográfico pontos de escurecimento diferentes.

O densitômetro usado para analisar os vários graus de escurecimento da autoradiografia deve ter um janela bem pequena para proporcionar a análise de pequenas variações de densidade óptica. Se a janela tiver dimensões razoáveis conseguiremos somente detectar mudanças bruscas de densidade, isto é, degraus de escurecimento entre uma área e a vizinha, com possíveis erros na avaliação da concentração do material radioativo.

Quando houver possibilidade de reações químicas entre a amostra e o filme, uma camada protetora homogênea e sem imperfeições deverá ser colocada entre os dois.

7. CONCLUSÕES

1. A técnica de autoradiografia pode ser utilizada, efetivamente, em várias circunstâncias para a obtenção de informações complementares de espécimes metálicos ensaiados por processos metalúrgicos e/ou químicos. A maioria das amostras preparadas para ensaios metalográficos pode ser estudada por autoradiografia que é um método de ensaio não-destrutivo.

2. Observações realizadas pelo método de autoradiografia têm particular importância no estudo do comportamento de metais que não podem ser detetados por métodos metalográficos. Nos estudos de heterogeneidade e distribuição dos componentes de ligas metálicas ou métodos tradicionais macro e micrográficos revelam esses fenômenos, mas às vezes são incapazes de identificar o elemento segregado ou o grau de segregação, especialmente se esta ocorrer em pequeníssimas quantidades.

Para esses propósitos a autoradiografia pode ser empregada tanto através do processo de irradiação da amostra como de introdução do elemento radioativo na liga no estágio de fundição.

3. A segregação do componente ativo é facilmente identificada na chapa fotográfica por ponto ou conjunto de pontos escuros que caracterizam as zonas do metal onde há maior concentração dos átomos radioativos.

4. Levando-se em conta o aspecto econômico e a sensibilidade do método, a autoradiografia é um método de ensaio não-destrutivo destinado à grande utilização no campo metalúrgico.

BIBLIOGRAFIA

1. PODAR, R. K. — Direct Approach to Quantitative Autoradiography. Journ. of Appl. Phys., pág. 1539, Outubro 1959.
2. KOHN, A. — Étude de l'Homogénéisation Des Ségrégations Dendritiques de Phosphore et l'Arsenic Dans les Aciers par la Méthode Autoradiographique. — Rev. de Metall. — L, 2 — pag. 139. 1953.
3. CINTRA, S. H. L.; GENTILE, E. F.; HAYDT, H. M. & CAPOCCHI, J. D. T. — Desenvolvimento de Placas Combustíveis Contendo Núcleo de Liga Al-U (20%) e Al-U (20%) - Si (0,8%). XXIII Congresso do ABM, Belo Horizonte, Julho 1968 — DMN — IEA. A ser publicado em Metalurgia.
4. PENTEADO F.º, A. C. & SANCHEZ, W. — Unidade Portátil de Tm-170 para Gamagrafia de Metais Leves — Metalurgia, vol. 24, n.º 127, pág. 425, junho, 1967.

R E S U M É

La technique de l'autoradiographie offre de grands avantages dans l'étude des alliages, particulièrement lorsque leurs constituants ne sont pas repartis uniformément mais tendent à se ségréger en petites zones.

La Division d'Opération et Manutention de Réacteurs de l'Institut d'Energie Atomique de São Paulo a développé des techniques de macro autoradiographie pour étudier les problèmes liés à la distribution de l'uranium et autres éléments actifs dans des échantillons métalliques. Les autoradiographies obtenues possèdent une haute résolution et sont destinées à des mesures quantitatives. L'obscurcissement du film produit par les particules alfa et bêta émises par l'uranium a été mesuré au moyen d'un micro photo densimètre. En comparant les différents degrés d'obscurcissement du film, on étudie la distribution de l'uranium dans l'alliage Al-U-Si. Dans ce travail les auteurs décrivent la technique adoptée, illustrée par différentes autoradiographies. On a conclu que le bas prix, la sensibilité de la méthode, et la facilité de l'interprétation contribuent à rendre cette technique très utile dans l'étude des problèmes métallurgiques.

A B S T R A C T

The autoradiography technique offers great advantages in the study of alloys, particularly of those in which the different metal constituents are not uniformly distributed but tend to segregate into small regions of high concentration. A simple method of macro-autoradiography having a high resolution to get quantitative measurements was developed to investigate problems concerning the distribution of uranium and other active elements in metal specimens. On the autoradiographs obtained the blackening produced by the alpha and beta radiation exposure is measured by a microphotometer. By comparison of the photographic densities the distribution of uranium in Al-U-Si alloys was studied. Illustrations are presented of the behavior of uranium distribution in Al-U-Si alloys.

6