

ПЕРЕХОД ВИСМУТА В СВИНЕЦ В ИМПУЛЬСНОМ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОМ ПОЛЕ

¹Балакирев В.Ф., ²Крымский В.В., ²Плотникова Н.В.

¹Институт металлургии УрО РАН, <http://www.imet-uran.ru>

г. Екатеринбург 620016, Российская Федерация

²Южно-Уральский государственный университет, <http://www.susu.ru>

г. Челябинск 454080, Российская Федерация

Поступила в редакцию 28.03.2017

Представлена действительным членом РАЕН А.А. Рухадзе

В работе рассматривается воздействие мощных наносекундных электромагнитных импульсов (НЭМИ) на расплавы, содержащие свинец и висмут. Главным контролируемым свойством является химический состав. Для воздействия используются специальные импульсные генераторы. Они вырабатывают импульсы положительной полярности длительностью на подувисоте 1 нс с амплитудой 6-10 кВ и частотой повторения 1 кГц. Обработка НЭМИ проводится непосредственно в тигле, в который вставляется медная трубка или стержень. Выводы генератора соединяются с тиглем и трубкой. Время обработки составляет десятки минут. До и после обработки измеряется уровень α -излучения и β -излучения твердого металла. Приводятся результаты 4 опытов, в которых отмечено уменьшение содержания висмута на 8-10% и такое же по величине увеличение содержания свинца. Для одного из опытов анализ химического состава проводится на трех различных по типу приборах. В качестве теоретической базы предложены теория электронного захвата под действием НЭМИ и изменение изотопного состава без изменения массы ядра. В доступной литературе отсутствуют результаты, которые описывают превращение десятков грамм висмута в такое же количество свинца.

Ключевые слова: импульс, поле, наносекунда, переход, висмут, свинец

УДК 544.032

СОДЕРЖАНИЕ

1. ВВЕДЕНИЕ (106)
 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ (107)
 3. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ (109)
 4. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ПОЛОЖЕНИЯ (110)
 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ (110)
- ЛИТЕРАТУРА (110)

1. ВВЕДЕНИЕ

Некоторые результаты воздействия мощных наносекундных электромагнитных импульсов (НЭМИ) на расплавы металлов и растворы солей приведены в наших работах [1-3]. Суть метода заключается в том, что расплав металла подвергается воздействию однополярных электромагнитных импульсов без несущей частоты длительностью 1 нс, амплитудой более 5 кВ. Импульсы генерируются специальными генераторами, которые имеют небольшие габариты и массу, потребляют от сети мощность менее 100 Вт. В наших исследованиях

использовались генераторы со следующими параметрами: амплитуда импульсов 7-10 кВ, длительность 1 нс, частота повторения 1 кГц.

Импульс с выхода генератора подается на излучатель. Мы использовали излучатели в виде отрезка коаксиальной линии. Тигель выполняет функцию внешнего проводника и должен быть проводником тока, например, графит. Непроводящий тигель вставляется в проводящий экран. Центральный проводник изготовлен из меди или графита и помещается в защитную трубку. Она отделяет излучатель от расплава и изготавливается из кварца. При низких температурах расплава ее можно не использовать.

После обработки НЭМИ расплавов металлов у затвердевшего металла изменяются многие механические свойства. Например, одновременно увеличивается прочность и пластичность, увеличивается ударная вязкость при низких температурах [1-4]. Вопросы

изменения химического состава расплавов и растворов под действием больших импульсных токов рассмотрены в работах [5-7].

Целью работы является экспериментальное исследование воздействия мощных НЭМИ на изменение химического состава свинцово-висмутового расплава.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

ОПЫТ 1. Облучение сплава Розе (Pb, Bi, Sn). Сплав стандартный. Содержание элементов по паспорту, масс. %: Pb – 32.87; Bi – 49.11; Sn – 17.95; Sb – 0.04; Cu – 0.01; As – 0.01; Fe – 0.006. Условия опыта: масса сплава 0.5 кг, тигель графитовый с внутренними размерами Ø45, глубина 90 мм. Излучатель – медный стержень Ø5 длиной 160 мм в кварцевой пробирке Ø10 мм. Производится расплавление сплава, размешивание кварцевой палочкой и отлив исходной пробы (№3) в керамический сосуд. Облучение расплава проводилось вне печи. Параметры генератора: амплитуда 6 кВ, частота 1 кГц. Время облучения 15 мин. Начальная температура облучения 350°C, конечная – 135°C. Отлив облученной пробы в керамический сосуд производили после перемешивания расплава (проба №4).

Из полученных отливок проб 3 и 4 новым напильником сделали опилки. Анализ химического состава опилок проводился на атомно-адсорбционном спектрофотометре "Квант-2А", который аттестован в государственной системе. Относительная погрешность анализа составляет ±2%, с доверительной вероятностью 0.95. Определяются элементы: Bi, Cd, Sn, Sb, Cu, Zn, Fe. Элемент Pb определяется как "остальное до 100%". Результаты анализа представлены в **Таблице 1.**

Из табл. 1 видно, что имеет место хорошее совпадение данных по исходной пробе с паспортными данными. Также наблюдается

совпадение баланса взаимопревращения элементов: сумм минусов (-7.4) и плюсов (+7.4).

ОПЫТ 2. Облучение сплава Pb, Bi. Сплав приготовлен самостоятельно. Свинец гранулированный, состав в масс. %: Pb – 99.88, Sb – 0.1, остальное Bi, Fe, Cu, Sn, Ag, As менее 0.06%; висмут гранулированный (состав: Bi – 97.9, Pb – 1.8, Ag – 0.08, остальное Cu, Fe менее 0.001%).

Для приготовления расплава использовалась навеска из свинца 0.55 кг и висмута 0.45 кг. Тигель графитовый, Ø55, высота 95 мм. Проводился нагрев свинца до 400°C, добавление висмута, размешивание, отлив исходной пробы (№21). Облучение расплава делали вне печи. Излучатель – медный стержень Ø5, длина 120 мм в кварцевой пробирке Ø10 мм. Параметры генератора: 6 кВ, 1 кГц. Время облучения 15 мин. Начальная температура облучения 400°C, конечная – 250°C. После перемешивания расплава отливали облученную пробу (№22).

Анализ проб 21 и 22 в виде опилок проводился на атомно-адсорбционном спектрофотометре "Квант-2А". Результаты представлены в **Таблице 2.**

Из табл. 2 видно, что содержание элементов в исходном образце очень близко к заданному весовым содержанием Pb – 55% и Bi – 45% и учетом дополнительного содержания 1.8% свинца в висмуте. После облучения наблюдается превращение 8% висмута в свинец. Правило баланса соблюдается.

Измерение радиоактивности свинца и висмута в виде опилок массой 1 г проводилось на малофоновой установке УМФ-2000. Результаты измерений: превышение фона α-излучения у свинца в 15 раз, у висмута – в 7 раз. Результаты измерений активности исходной и облученных проб: превышение фона α-излучения у исходной пробы №21 в 6.25 раза, у облученной пробы №22 в 14.7 раз. После облучения произошло значительное

Таблица 1
Содержание элементов, масс. %

Элемент	Pb	Bi	Sn	Sb
Исходный, №3	32.3	50.0	17.5	0.2
Облученный, № 4	39.66	43.1	17.0	0.24
Изменение	+7.36	-6.9	-0.5	+0.04

Таблица 2
Содержание элементов, масс. %

Элемент	Pb	Bi	Sn	Sb
Исходный, №21	57	43.0	0.005	0.014
Облученный, № 22	65	35.0	0.006	0.014
Изменение	+8.0	-8.0	+0.001	0

увеличение уровня α -излучения облученного образца. Измерения радиоактивности этих образцов через год дали превышение фона в исходной пробе в 5.6 раза, в облученной – в 3.6 раза. Изменение уровня β -излучения находится в пределах погрешности.

ОПЫТ 3. Облучение сплава Розе (Pb, Bi, Sn). Сплав куплен у изготовителя (Новосибирский ОК). Условия опыта: масса сплава 0.5 кг, тигель алундовый с внутренними размерами $\varnothing 55$ мм, глубина 70 мм в экране из медной фольги. Излучатель – медный стержень $\varnothing 5$ длиной 160 мм в кварцевой пробирке $\varnothing 10$ мм. Проводится нагрев сплава до 400°C, размешивание и отлив исходной пробы (№23). Параметры генератора: 6 кВ, 1 кГц, время облучения 15 мин. Начальная температура облучения 400°C, конечная – 215°C. После размешивания проводится отлив облученной пробы (№24).

Анализ проб 23 и 24 в виде опилок проводился на атомно-адсорбционном спектрофотометре "Квант-2А". Результаты представлены в **Таблице 3**.

Из этой таблицы видно, что после облучения большое количество висмута перешло в свинец. Наблюдается также переход небольшой части олова в свинец. Соблюдается правило баланса: $-12.9 \rightarrow +12.9$.

Результаты измерений радиоактивности исходной и облученных проб: превышение фона α -излучения у исходной пробы в 115 раз, у облученной – в 82 раза. После облучения произошло значительное уменьшение уровня α -излучения облученного образца. Измерения радиоактивности этих образцов через год дали превышение фона в исходной пробе в 35.6 раза, в облученной – в 29.6 раза. Изменение уровня β -излучения находится в пределах погрешности.

ОПЫТ 4. Облучение сплава Pb и Bi. Сплав приготовлен самостоятельно. Химический

состав свинца и висмута приведен в опыте 3. Для расплавления использовалась навеска из свинца 0.17 кг (39%) и висмута 0.27 кг (61%). Тигель графитовый, $\varnothing 45$, высота 95 мм.

Проводился нагрев свинца до 400°C, добавление висмута, выдержка при температуре 300°C, размешивание, отлив исходной пробы (№31). Режим облучения: излучатель – графитовый стержень $\varnothing 6$ мм без защитной трубки, глубина погружения 85 мм. Генератор: амплитуда 10 кВ, частота повторения 1 кГц. Время обработки 10 мин. Начальная температура облучения 260°C, конечная – 210°C. После перемешивания проводился отлив облученной пробы (№32).

Исследования химического состава проводились на растровом электронном микроскопе фирмы JEOL JSM-6460LV (Япония) с системой микроанализа JXFORD INCA EWC453 (Великобритания). Замеры производились на свежих поперечных срезах образцов. При увеличении, равном 30, исследовались три площадки размером 2×3 мм.

Различия по химическому составу между исходными и облученными образцами по результатам средних значений трех измерений представлены в **Таблице 4**.

Из таблицы видно, что происходит значительное изменение химического состава, которое в 11 раз превышает погрешность измерения. Баланс изменения масс элементов соблюдается.

Результаты измерений радиоактивности: превышение фона α -излучения у свинца в 2.9 раза, у висмута – уровень фона. Результаты измерений активности исходной и облученных проб: превышение фона α -излучения у исходной пробы отсутствует, у облученной – в 3.6 раза. После облучения произошло незначительное увеличение уровня α -излучения облученного образца.

Таблица 3
Содержание элементов, масс. %

Элемент	Pb	Bi	Sn	Sb
Исходная, №23	15.4	67.0	17.4	0.2
Облученная, № 24	28.26	55.1	16.4	0.24
Изменение	+12.86	-11.9	-1.0	+0.04

Таблица 4
Средние значения химического состава, масс. %

Элемент	Pb	Bi
Исходная	30.34	69.66
Облученная	41.96	58.04
Изменение	+11.62	-11.62
Погрешность	1.02	1.05

3. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ

Все наши опыты были проведены по одной методике. После подготовки расплава проводилось его перемешивание кварцевой палочкой и отлив пробы "исходная" в керамический сосуд. Известно [8], что свинец при температуре плавления 327°C имеет плотность 10678 кг/м³, а в твердом состоянии – 11350. Соответственно, висмут в жидком состоянии при температуре плавления 271°C имеет плотность 10050, а в твердом – 9747 кг/м³. Из этого следует, что при увеличении температуры расплава выше температуры плавления плотность свинца будет падать, а плотность висмута возрастать. Возможно, что при температурах расплава 350-400°C, при которых начинается процесс облучения и отливается проба "исходная", эти плотности будут близки. Можно подсчитать максимальную ошибку за счет разности плотностей на плотности 10678 для свинца и 10050 для висмута. Если совсем не перемешивать расплав, разность плотностей составит 628 кг/м³. По отношению к свинцу это составит 5.9%. За счет разности плотностей при недостаточном перемешивании возможно получение исходной пробы с повышенным содержанием висмута.

Следующим местом влияния на качество пробы является место, куда отливается проба. В наших опытах отлив проб проводился в керамический сосуд размером 10×10×70 мм. В нем происходит кристаллизация расплава.

Для характеристики процесса кристаллизации используют диаграмму состояния сплава Bi–Pb [9]. Кристаллизация сплавов свинец-висмут происходит в интервале температур. Поэтому состав кристаллов, образующихся в начале затвердевания, может существенно отличаться от состава последних капель кристаллизующегося расплава. Чем шире температурный интервал кристаллизации сплава, тем сильнее развивается ликвация. Единственным сплавом системы свинец-висмут, кристаллизующимся при постоянной температуре (125°C), является сплав эвтектического состава, содержащий 56% (ат.) Bi.

Для анализа химического состава образцов: "исходный – №31" и "облученный – №32" была проведена следующая работа. С помощью микрорентгеноспектрального анализа на микроскопе фирмы "Carl Zeiss" было проведено

Таблица 5

Химический состав образцов, масс. %

Элемент	Pb	Bi
Исходный, №31	49.6	50.4
Облученный, №32	59.6	40.1
Изменение	+10.0	-10.3

исследование поперечного сечения образцов 31 и 32 в направлении от низа образца к его верху в 8 областях. Площадь области замера ≈0.5×0.5 мм. При обработке результатов анализов металлических отливок используют метод исключения результатов, связанных с границами отливки – верхней и нижней. В Таблице 5 приведены средние значения химического состава по 6 слоям. Эти значения несколько меньше цифр, приведенных в Табл. 4.

Все вышеприведенные результаты относились к анализам твердых образцов. Растровый электронный микроскоп допускает анализ образцов в виде порошков и опилок. Для сравнения результатов из образцов 31 и 32 в поперечном направлении были напильны мелким напильником опилки. На нейтральной клеевой основе эти опилки наклеивались на торец стержня Ø4 мм, который устанавливался в камеру анализа. Площадь анализируемой поверхности ≈10 мм². Данные полученного анализа приведены в Таблице 6.

Эти данные очень близки к данным, приведенным в Табл. 4.

Анализ образцов 31 и 32 проводился также на атомно-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой "Spektroflame Modula S". Перед анализом навеску сплава 0.22 г растворяли в царской водке (HCl: HNO₃ = 3 : 1) при нагревании. Навеска была получена путем высверливания стружки сверлом диаметром 3 мм в вертикальном направлении образца. После полного растворения навески раствор переводили в мерные колбы и брали аликвоты, которые использовались для анализа. Замеры концентраций проводились с использованием

Таблица 6

Химический состав образцов №31 и №32 (опилки), масс. %

Элемент	Pb	Bi
Исходный, №31	29.1	70.9
Облученный, №32	40.97	59.3
Изменение	+11.87	-11.6

Таблица 7
Среднее содержание элементов, масс. %

Элемент	Pb	Bi
Исходный, №31	34.5	65.65
Облученный, №32	44.6	55.15
Изменение	+10.1	-10.5

метода стандартных добавок. Проводилось по два измерения. Данные анализа представлены в **Таблице 7**.

Для удобства сравнения ниже в **Таблице 8** приведены вместе все данные по измерению содержания свинца и висмута в образцах 31 и 32 при различных условиях измерения.

Данные в этой таблице однозначно указывают на уменьшение содержания висмута и эквивалентное увеличение содержания свинца за время облучения.

4. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ПОЛОЖЕНИЯ

Одной из гипотез для теоретического обоснования перехода $Bi \rightarrow Pb$ под действием НЭМИ является теория электронного захвата [6, 7, 10]. Согласно этой теории изменение атомной массы не происходит, а один из протонов висмута становится нейтроном. Для анализа изотопного состава долгоживущих изотопов свинца и висмута воспользуемся таблицей из работы [10]. В работе [11] получен новый результат об изотопе ^{209}Bi . Обнаружено его α -излучение с энергией 3.13 кэВ и определен период полураспада $1.9 \cdot 10^{19}$ лет. Изотоп ^{204}Pb в литературе указан как стабильный. Однако в работе [10] он указан как радиоактивный с периодом полураспада $1.4 \cdot 10^{17}$ лет. Наличие α -активности исходных и облученных образцов в опытах 2, 3, 4 и её изменение со временем в опытах 2 и 3 указывает на наличие и изменение изотопного состава после облучения НЭМИ.

Из данных таблицы, которая приведена в работе [10] видно, что если в расплаве до облучения присутствуют изотопы ^{210m}Bi , ^{208}Bi и ^{207}Bi , то после облучения НЭМИ они могут

Таблица 8
Изменения содержания Pb и Bi образцов 31 и 32, масс. %

Элемент	Pb	Bi	Анализатор
Металл, 3 площадки	+11.97	-11.97	JEOL
Опилки, 10мм ²	+11.87	-11.6	JEOL
Металл, 6 площадок	+10.0	-10.3	Carl Zeiss
Стружка, 2 измерения	+10.1	-10.5	Spektroflame Modula S

дать долгоживущий изотоп свинца ^{210}Pb или стабильные изотопы ^{208}Pb и ^{207}Pb . Изотоп ^{209}Pb имеет малое время полураспада. При его наличии было бы значительное изменение результатов анализа в течение времени. Этого эффекта у нас не наблюдалось. К сожалению, у нас не было приборов для измерения изотопного состава висмута и свинца. Поэтому предложенные переходы $^{210m}Bi \rightarrow ^{210}Pb$, $^{208}Bi \rightarrow ^{208}Pb$ и $^{207}Bi \rightarrow ^{207}Pb$ следует рассматривать как научную гипотезу.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Приведенные в работе данные экспериментальных исследований с большой степенью достоверности указывают на возможность превращения десятков грамм висмута в свинец под действием импульсных полей. Данные легко проверяемы. Генераторы импульсов можно приобрести в фирме "Фидтехнологии", г. Санкт-Петербург. При выборе исходных материалов следует обратить особое внимание на висмут. При неудачном выборе висмута можно получить коэффициент превращения висмута в свинец порядка 3%. Все остальные условия опытов подробно описаны выше.

Из анализа опытов на водных растворах можно указать еще одну пару элементов – медь и никель, в которых могут происходить подобные явления.

ЛИТЕРАТУРА

1. Балакирев ВФ, Крымский ВВ, Кулаков БА, Ри Хосен. *Электроимпульсные нанотехнологии*. Екатеринбург, УрО РАН, 2009, 141 с.
2. Шабурова НА. *Обработка металлов и сплавов наносекундными электромагнитными импульсами*. Челябинск, Изд. ЦНТИ, 2011, 94 с.
3. Балакирев ВФ, Крымский ВВ, Шабурова НА. *Наноимпульсные технологии*. Челябинск, Изд. ЦНТИ, 2012, 124 с.
4. Krumski VV, Shaburova NA, Filimonov IE. Pulse electromagnetic effect on metal melts. *J. of Chemistry and Chemical Engineering*, 2012, 6(11):967.
5. Уруцкоев ЛИ, Ликсонов ВИ, Циноев ВГ. Экспериментальное обнаружение "странного" излучения и трансформации химических элементов. *Прикладная физика*, 2000, 4:83-100.
6. Крымский ВВ, Балакирев ВФ. Воздействие наносекундных электромагнитных импульсов

- на свойства веществ. *Доклады РАН*, 2002, 385(6):786-787.
7. Балакирев ВФ, Крымский ВВ, Болотов БВ, Васильева НВ, Вачаев АВ, Иванов НИ, Казбанов ВИ, Павлова ГА, Солин МИ, Трофимов ВИ, Уруцкоев ЛИ. *Взаимопревращения химических элементов*. Екатеринбург, УРО РАН, 2003, 93 с.
 8. Emsley J. *The elements*. Oxford, Clarendon press, 1991, 256 p.
 9. Будберг ПБ, Алисова СП. *Диаграммы состояния двойных и многокомпонентных систем на основе железа*. М., Metallurgia, 1986, 525 с.
 10. Широков ЮМ, Юдин НП. *Ядерная физика*. М., Наука, 1980, 727 с.
 11. Varcillas P, Coron N, Dambier G, Leblanc J, Moalik JP. Experimental detection of alpha-particles from the radioactive decay of natural bismuth. *Nature*, 2003, 422(6934):876-878.

Балакирев Владимир Федорович

д.х.н., проф., чл.-корр. РАН

Институт металлургии УрО РАН

101, ул. Амурдсена, Екатеринбург 620016, Россия

vfbal@mail.ru

Крымский Валерий Вадимович

д.ф.-м.н., проф.

Южно-Уральский государственный университет

Политехнич. институт, энергетич. факультет,

каф. теоретич. основ электротехники

76, пр. Ленина, Челябинск 454080, Россия

krymskiivv@susu.ru

Плотникова Наталья Валерьевна

к.т.н., доц.

Южно-Уральский государственный университет

Высш. школа электроники и комп. наук, каф.

систем автоматич. управления

76, пр. Ленина, Челябинск 454080, Россия

plotnikovanv@susu.ru

TRANSITION OF BISMUTH TO LEAD IN THE PULSE ELECTROMAGNETIC FIELD

Vladimir F. Balakirev

Institute of Metallurgy of the Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, <http://www.imet-uran.ru>
Ekaterinburg 620016, Russian Federation
vfbal@mail.ru.

Valeriy V. Krymsky, Nataliya V. Plotnikova

South Ural State University, <http://www.susu.ru>
Chelaybinsk 454080, Russian Federation
krymskiivv@susu.ru, plotnikovanv@susu.ru.

Abstract. Impact of powerful nanosecond electromagnetic impulses (NEMI) on fusions containing lead and bismuth is considered. The main controlled property is chemical composition. Special pulse generators are used for influence. They produce pulses of the positive polarity with duration of 1 nanosecond on a half-height, with amplitude of 6-10 kV and repetition frequency of 1 kHz. Processing of NEMI is carried out directly in a crucible into which the copper tube or a core is inserted. Outputs of the generator connect with a crucible and a tube. Time of processing is tens of minutes. The level of α -radiation and β -radiation of solid metal is measured before and after processing. There are given the results of 4 experiences in which the reduction of amount of bismuth by 8-10% and the same in size increase of amount of lead is noted. For one of experiences the analysis of the chemical composition is carried out on three devices, various on type. The theory of electronic capture under the influence of NEMI and change of isotope structure without change of mass of a kernel are offered as theoretical base. Results which describe transformation of tens of grams of bismuth into the same amount of lead are absent in available literature.

Keywords: impulse, field, nanosecond, transition, bismuth, lead

UDC 544.032

Bibliography – 11 references

Received 28.03.2017

RENSIT, 2017, 9(1):106-112

DOI: 10.17725/rensit.2017.09.106
