

05.3; 12

© 1992

ТЕПЛОВОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ ПРИ АВТОВОЛНОВОМ  
ОКИСЛЕНИИ ПЛЕНОК ЖЕЛЕЗА

В.Г. М я г к о в, Н.В. Б а к ш е е в

В работе [1] была представлена специфика начального окисления пленок железа, состоящая в том, что в зависимости от скорости нагрева

поверхности  $\eta = \frac{\partial T}{\partial t}$  пленок может реализоваться как обычное окисление (при  $\eta \rightarrow 0$ , квазиизотермический нагрев), так и автоволновой окислительный процесс (АВОП) (при  $\eta \rightarrow \infty$ , адиабатический нагрев). Последний начинается с зародыша, который самоподдерживающим образом со скоростью  $v \sim (0.2 \div 0.3) \cdot 10^{-2}$  м/с, распространяется по поверхности. Толщина окисла может быть как осциллирующей от времени и расстояния  $r$  до центра АВОП, так и практически постоянной (рис. 1). В первом случае АВОП пленок железа визуально напоминает распространение волн на воде от брошенного камня, но в рассматриваемом процессе волны имеют радужную окраску. При этом АВОП пленок железа подобен автоволновому процессу типа „ведущий центр“ [2, 3]. Во втором случае такой процесс называют волной перепада [2], или „бегущий“ фронт [3]. Самоподдерживающий характер движения определен тем, что происходит выделение энергии на границе железа с окислом, т. е. возникает волна поверхностного горения. В целом АВОП подобен процессу „взрывной“ кристаллизации [4].

В представленной работе подтверждается изотермический характер процесса и оценивается температура окисла при АВОП.

Эксперименты проводились на тонких пленках железа толщиной 150 нм, полученных методом ионно-плазменного напыления на стеклянные подложки с линейными размерами 24 x 24 мм и толщиной  $d_2 = 1.4 \cdot 10^{-3}$  м.

В процессе адиабатического нагрева АВОП, на исследованных пленках с подложками данной толщины, соответствует волнам перепада [1]. Максимальная температура должна быть на фронте волны, где происходит большое тепловыделение. Но при этом уменьшение температуры в направлении окисной фазы должно быть плавным (рис. 1), так как фронт окисления движется в железо. Основная часть выделившегося тепла остается в окисле (коэффициент температуропроводности железа больше коэффициента температуропроводности окисла).

Регистрация инфракрасного излучения производилась на установке схематически изображенной на рис. 1. Образец (2) помещался на нагреватель (1) при температуре 500 °С. В установке использовался шелевой экран, позволяющий регистрировать излучение

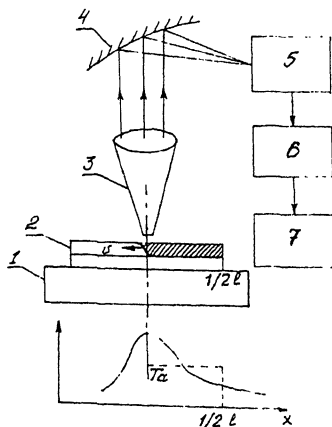


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для определения теплового потока при АВОП и температурный профиль окисла, связанный с фронтом окисления.

только с малого участка ( $\sim 4 \text{ мм}^2$ ) поверхности пленки. Сфокусированное параболическим зеркалом (4) излучение поступало на механический модулятор (5) (частота модуляции 240 Гц) с приемником инфракрасного излучения МГЗО. Далее сигнал подавался на селективный усилитель (6) и регистрировался двухкоординатным самописцем (7).

На рис. 2 изображен наиболее характерный график зависимости плотности теплового потока от температуры. После того как образец помещался на нагреватель, плотность теплового потока  $Q$  уменьшалась на величину  $\Delta Q = (T_1 - T_0)/R$ , где  $(T_1 - T_0)$  соответствует разности температур поверхности образца и нагревателя, равной в условиях эксперимента  $25^\circ$ . Тепловое сопротивление системы пленка + подложка  $R = d_1/\lambda_1 + d_2/\lambda_2$ , где  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  - коэффициенты теплопроводности пленки и подложки. В расчетах использовались значения теплофизических величин, приведенные в [5]. Значение коэффициента теплопроводности стекла при  $500^\circ\text{C}$  соответствует  $\lambda_2 = 0.3 \text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{К})$  с учетом обратно пропорциональной зависимости от абсолютной температуры. Подставляя эти данные в формулу теплового потока, получаем  $\Delta Q = 5.3 \cdot 10^3 \text{ Вт}/\text{м}^2$ . По истечении времени  $1 \div 2$  секунды, необходимого для прогрева подложки, начинался АВОП, в результате которого возрастал тепловой поток от образца, что подтверждает экзотермический характер процесса окисления. Через  $5 \div 6$  секунд АВОП заканчивался и тепловой поток уменьшался. Заштрихованная площадь под частью графика, отражающая этот процесс, соответствует плотности теплоты  $E = 2.3 \times 10^3 \text{ Дж}/\text{м}^2$ , выделившейся при автоволновой реакции окисления.

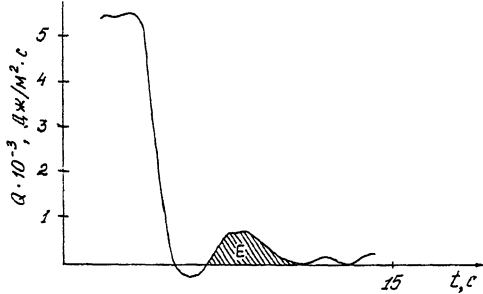


Рис. 2. Зависимость плотности теплового потока от времени. Затрихованная область определяет плотность теплоты, выделившейся при экзотермической реакции АВОП.

С другой стороны, плотность теплоты  $E = \int_{T_0}^{T_A} c dT$ , где  $c$  — удельная

(на единицу площади) теплоемкость пленки. Принимая плотность окисла  $\rho = 5.1 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>, среднее значение теплоемкости  $c_p = 200$  Дж/моль·град, получаем значение  $T_A = 3800$  °С.

Расчетное значение температуры  $T_A$  меньше температуры парообразования, так как контроль содержания атомов железа методом рентгеновского флуоресцентного анализа не показывает значительного испарения окисла.

Вычисленная температура окисла  $T_A$  является средней за время протекания АВОП. Истинный профиль температуры должен быть аналогичен профилю изображенному на рис. 1. Поэтому температура на фронте окисления может оказаться выше  $T_A$ . С другой стороны, средняя температура окисла  $T_A$  меньше суммы температурного эквивалента теплового эффекта и температуры  $T_0$  ( $T_H = \Delta H^{\circ}_{обр}/C + T_0 = 6000$  °С, где  $\Delta H^{\circ}_{обр}$  — энтальпия образования окислов равная  $1.1 \cdot 10^6$  Дж/моль и  $0.84 \cdot 10^6$  Дж/моль для  $Fe_3O_4$  и  $Fe_2O_3$  соответственно). Отсюда следует, что происходит значительная диссипация энергии, выделившейся при АВОП, которая во многом определяется температуропроводностью подложки. С этой целью адиабатически нагревались пленки железа, осажженные на медные подложки, обладающие высокой температуропроводностью. На этих пленках АВОП реализовать не удалось.

АВОП существует не только в пленках железа (толщина окисла не превосходит 250–300 нм), но также в других металлах и сплавах. Большая температура окисной пленки может изменить в целом свойства пленочного образца. Поэтому эффект АВОП необходимо

учитывать при больших скоростях нагрева тонких пленок, например при термомагнитной записи информации.

#### С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] М я г к о в В.Г., Ф р о л о в Г.И. // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. В. 23. С. 1-4.
- [2] П а л а к Л.С., М и х а й л о в А.С. Самоорганизация в неравновесных физико-химических системах М.: Наука, 1983. 285 с.
- [3] В а с и л ь е в В.А., Р о м а н о в с к и й Ю.М., Я х н о В.Г. Автоволновые процессы М.: Наука, 1987. 240 с.
- [4] Ш к л о в с к и й В.А., К у з ь м е н к о В.М. // УФН. 1989. Т. 157. В. 2. С. 311-338.
- [5] Таблица физических величин / Под ред. И.К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1006 с.

Поступило в Редакцию  
10 февраля 1992 г.