

НАНО- и МИКРОСИСТЕМНАЯ ТЕХНИКА

Том 18. № 3 ♦ 2016

ЕЖЕМЕСЯЧНЫЙ МЕЖДИСЦИПЛИНАРНЫЙ ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ И ПРИКЛАДНОЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Журнал выпускается при научно-методическом руководстве Отделения нанотехнологий
и информационных технологий Российской академии наук

Журнал включен в перечень научных и научно-технических изданий ВАК России,
в систему Российского индекса научного цитирования и реферируется в базе данных INSPEC
и базе данных RSCI на платформе Web of Science

Издается с 1999 г.

Главный редактор

Мальцев П. П., д.т.н., проф.

Зам. гл. редактора

Лучинин В. В., д.т.н., проф.

Шур М., д.ф.-м.н., проф. (США)

Редакционный совет:

Аристов В. В., д.ф.-м.н., проф., чл.-кор. РАН

Асеев А. Л., д.ф.-м.н., проф., акад. РАН

Гапонов С. В., д.ф.-м.н., проф., акад. РАН

Каляев И. А., д.т.н., проф., чл.-кор. РАН

Квардаков В. В., д.ф.-м.н., проф., чл.-кор. РАН

Климов Д. М., д.т.н., проф., акад. РАН

Ковальчук М. В., д.ф.-м.н., проф., чл.-кор. РАН

Нарайкин О. С., д.т.н., проф., чл.-кор. РАН

Никитов С. А., д.ф.-м.н., проф., чл.-кор. РАН

Рыжий В. И., д.ф.-м.н., проф., чл.-кор. РАН

(Япония)

Сауров А. Н., д.т.н., проф., чл.-кор. РАН

Сигов А. С., д.ф.-м.н., проф., акад. РАН

Чаплыгин Ю. А., д.т.н., проф., чл.-кор. РАН

Шевченко В. Я., д.х.н., проф., акад. РАН

Редакционная коллегия:

Абрамов И. И., д.ф.-м.н., проф. (Беларусь)

Агеев О. А., д.т.н., проф.

Андреев А., к.ф.-м.н., (Великобритания)

Андриевский Р. А., д.х.н., проф.

Антонов Б. И.

Астахов М. В., д.х.н., проф.

Быков В. А., д.т.н., проф.

Горнев Е. С., д.т.н., проф.

Градецкий В. Г., д.т.н., проф.

Кальнов В. А., к.т.н.

Карякин А. А., д.х.н., проф.

Колобов Ю. Р., д.т.н., проф.

Кузин А. Ю., д.т.н., проф.

Панич А. Е., д.т.н., проф.

Петросянц К. О., д.т.н., проф.

Петрунин В. Ф., д.ф.-м.н., проф.

Пожела К., д.ф.-м.н. (Литва)

Путилов А. В., д.т.н., проф.

Телец В. А., д.т.н., проф.

Тимошенко С. П., д.т.н., проф.

Тодуа П. А., д.т.н., проф.

Шубарев В. А., д.т.н., проф.

Отв. секретарь

Лысенко А. В.

Редакция:

Григорин-Рябова Е. В.

Чугунова А. В.

Учредитель:

Издательство "Новые технологии"

СОДЕРЖАНИЕ

НАНОТЕХНОЛОГИИ И ЗОНДОВАЯ МИКРОСКОПИЯ

Карташев В. А., Карташев В. В. Изображение нанорельефа при интерпретации измерений методом имитационного моделирования . . . 131

Залуцкая А. А., Савинский Н. Г., Проказников А. В. Селективное резонансное поглощение электромагнитного излучения наноструктурированными системами . . . 136

МАТЕРИАЛОВЕДЧЕСКИЕ И ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ МНСТ

Рискин Д. Д., Жукова С. А., Обижаев Д. Ю., Турков В. Е. Измерение прочностных свойств адгезионных соединений, полученных методом термокомпрессионного срачивания пластин, при изготовлении МЭМС . . . 160

МОДЕЛИРОВАНИЕ И КОНСТРУИРОВАНИЕ МНСТ

Старых А. А. Метод синтеза запоминающих элементов самосинхронных схем . . . 166

ЭЛЕМЕНТЫ МНСТ

Александров П. А., Бударягин В. В., Жук В. И., Литвинов В. Л., Стельмак С. Е. Сравнительные оценки отказоустойчивости мажоритарно резервированных и покомпонентно дублированных микросхем при облучении . . . 176

Аннотации на русском и английском языках с 1999 г. по настоящее время находятся в свободном доступе на сайте журнала (<http://microsystems.ru>; <http://novtex.ru/nmst/>) и научной электронной библиотеки (<http://elibrary.ru>). Электронные версии полнотекстовых статей расположены на сайте журнала: с 1999 по 2014 г. в разделе "АРХИВ".

ПОДПИСКА:

по каталогу Роспечати (индекс 79493);

по каталогу "Пресса России" (индекс 27849)

в редакции журнала (тел./факс: (499) 269-55-10)

Адрес для переписки:

107076 Москва,

Стромынский пер., д. 4

e-mail: nmst@novtex.ru

Journal of NANO- and MICROSYSTEM TECHNIQUE

NANO- I MIKROSISTEMNAYA TEHNIKA

ISSN 1813-8586

Vol. 18

No. 3

2016

Maltsev P. P., Dr. Sci. (Tech.), Prof. — **CHIEF EDITOR**
Luchinin V. V., Dr. Sci. (Tech.), Prof.

DEPUTY CHIEF EDITOR

Shur M. S., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof. (USA) —
DEPUTY CHIEF EDITOR

Editorial council:

Aristov V. V., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Aseev A. L., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Acad. RAS
Chaplygin Ju. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Gaponov S. V., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Kaljaev I. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Klimov D. M., Dr. Sci. (Tech.), Prof., Acad. RAS
Kovalchuk M. V., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Kvardakov V. V., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Narajkin O. S., Dr. Sci. (Tech.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Nikitov S. A., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Ryzhii V. I. (Japan), Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof.,
Cor.-Mem. RAS
Surov A. N., Dr. Sci. (Tech.), Prof., Cor.-Mem. RAS
Shevchenko V. Ya., Dr. Sci. (Chem.), Prof., Acad. RAS
Sigov A. S., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof., Acad. RAS

Editorial board:

Abramov I. I. (Belorussia), Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof.
Ageev O. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Andreev A. (UK), Cand. Sci. (Phys.-Math.), Prof.
Andrievskii R. A., Dr. Sci. (Chem.), Prof.
Antonov B. I.
Astahov M. V., Dr. Sci. (Chem.), Prof.
Bykov V. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Gornev E. S., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Gradetskiy V. G., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Kalnov V. A., Cand. Sci. (Tech.)
Karjakin A. A., Dr. Sci. (Chem.), Prof.
Kolobov Ju. R., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Kuzin A. U., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Panich A. E., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Petrosjants C. O., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Petrinin V. F., Dr. Sci. (Phys.-Math.), Prof.
Pozhela K. (Lithuania), Dr. Sci. (Phys.-Math.)
Putilov A. V., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Shubarev V. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Telets V. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Timoshenkov S. P., Dr. Sci. (Tech.), Prof.
Todua P. A., Dr. Sci. (Tech.), Prof.

Executive secretary:

Lysenko A. V.

Editorial staff:

Chugunova A. V.
Grigorin-Ryabova E. V.

Our:

Web: www.microsystems.ru/eng;
e-mail: nmst@novtex.ru

To subscribe, please contact with:

JSC "MK-Periodica":
Tel: +7 (495) 672-7012
Fax: +7 (495) 306-3757
E-mail: import@periodicals.ru

The Journal is included in the list
of the Higher Attestation Commission
of the Russian Federation,
in the Russian system of science citation index,
INSPEC data base
and RSCI data base

Published since November 1999

CONTENT

NANOTECHNOLOGY AND SCANNING PROBE MICROSCOPY

Kartashev V. A., Kartashev V. V. Obtaining of Nanoscale
Surface Images by Simulation of STM Measuring Process . . . 134

Zalutskaya A. A., Savinskii N. G., Prokaznikov A. V. Selec-
tive Resonance Absorption of Electromagnetic Radiation by
Nanostructured Systems 150

SCIENCE OF MATERIALS AND TECHNOLOGICAL BASICS OF MNST

Riskin D. D., Zhukova S. A., Obizhayev D. Y., Turkov V. E.
Measurement of the Strength Properties of the Adhesive Junc-
tions Obtained by Thermocompression Wafer Bonding for
Manufacture of MEMS 164

MODELLING AND DESIGNING OF MNST

Starykh A. A. Method for Synthesis of the Storage Elements
for the Self-Synchronizing Circuits 173

MICRO- AND NANOSYSTEM TECHNIQUE ELEMENTS

**Aleksandrov P. A., Budaragin V. V., Zhuk V. I., Litvinov V. L.,
Stelmak S. E.** Comparative Assessments of the Fault-toler-
ance of the Majority Redundant and Component-Wise Dubli-
cated Microcircuits under Irradiation 185

Нанотехнологии и зондовая микроскопия

NANOTECHNOLOGY AND SCANNING PROBE MICROSCOPY

УДК 51.007.57

В. А. Карташев, д-р физ.-мат. наук, вед. науч. сотр., e-mail: kart@list.ru,

В. В. Карташев, канд. физ.-мат. наук, мл. науч. сотр.,

ФГБУН Институт прикладной математики им. М. В. Келдыша РАН, Москва

ИЗОБРАЖЕНИЕ НАНОРЕЛЬЕФА ПРИ ИНТЕРПРЕТАЦИИ ИЗМЕРЕНИЙ МЕТОДОМ ИМИТАЦИОННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

Поступила в редакцию 20.10.2015

Рассматривается подход к интерпретации измерений нанорельефа, который основан на математическом моделировании процесса сканирования. Обсуждаются условия, которым должна удовлетворять поверхность, для того чтобы ее образ, полученный по результатам моделирования, и оригинал совпадали. Дается оценка точности представления моделью поверхности различных участков нанорельефа.

Ключевые слова: туннельная микроскопия, имитационное моделирование процесса измерений, точность измерения нанорельефа поверхности

Введение

Туннельная микроскопия используется для визуального исследования поверхности с нанометровым разрешением [1]. Точность метода зависит от размеров острия иглы. Распространенная технология изготовления игл [2, 3] позволяет получать острия диаметром до нескольких нанометров. Такие иглы делают возможным измерение рельефа поверхности с точностью до 5 нм.

При исследовании геометрии образований меньшего размера необходимо интерпретировать измерения с учетом формы и размеров острия. В атомно-силовой микроскопии метод увеличения разрешения путем учета геометрии острия иглы используется достаточно давно [3, 4]. До последнего времени в туннельной микроскопии он не применялся, так как не существовало доступного способа определения формы и размера острия, который обеспечивал бы точность измерения порядка долей нанометра. В работе [5] показано, что эту задачу можно решить методом имитационного моделирования процесса измерений. С методом можно также познакомиться в статье [6].

Особенности технологии измерений

Измерение рельефа туннельным микроскопом проводят путем перемещения иглы на некотором удалении от поверхности. Зазор (обычно доли нанометра) регулируется силой туннельного тока, задаваемой в параметрах сканирования. Зазор вычисляется исходя из силы туннельного тока по известным формулам. При сканировании туннельный ток поддерживается постоянным, для того чтобы обеспечить постоянство высоты движения иглы над поверхностью. Выполнение этого условия обеспечивает соответствие измерений реальному рельефу поверхности.

Постоянство туннельного зазора в процессе сканирования удобно рассматривать как скольжение туннельной оболочки по поверхности. Туннельная оболочка — это гипотетическая фигура, которая используется в процессе моделирования. Ее поверхность равноудалена от поверхности иглы на размер туннельного зазора. Непрерывность касания туннельной оболочкой измеряемой поверхности позволяет представить нанорельеф поверхностью фигуры, являющейся объединением внутрен-

ностей туннельных оболочек во всех точках сканирования. Построенная этим методом поверхность учитывает как геометрию острия иглы, так и размер туннельного зазора. Заметим, что поверхность, построенная в результате непосредственной визуализации измерений, параметры иглы и условия измерений не учитывает.

Различия в изображениях нанорельефа

Сравнение изображений, полученных при непосредственной визуализации измерений и после учета геометрии острия иглы, позволяет сделать вывод о существенных изменениях формы мелких элементов нанорельефа. Эти различия нетрудно заметить путем непосредственного сравнения рис. 1, *a* и рис. 1, *b*.

На рис. 1, *a* приведено изображение участка поверхности меди, которая была напылена на стеклянную подложку. Оно построено путем прямой визуализации измерений. Относительная высота точки соответствует ее яркости (чем светлее, тем выше). Перепад высот составляет 11 нм. На изображении четко различимы сферические объекты, которые сплошником покрывают поверхность. Размеры объектов сильно различаются. На рисунке легко сравнить их размеры друг с другом. Темные промежутки между объектами выглядят как узкие щели, в которые игла не смогла проникнуть.

На рис. 1, *b* представлено изображение результатов измерений, которое получается при имитационном моделировании процесса сканирования. Результаты моделирования показывают, что рельеф измерялся острием диаметром 2,0 нм, туннель-

ный зазор составлял 0,5 нм. Знание фактической геометрии острия позволяет точнее отобразить измеряемую поверхность.

Непосредственное сравнение рис. 1, *a* и рис. 1, *b* позволяет легко выявить существенные различия в изображениях нанорельефа. Рис. 1, *b* не содержит сферических образований. Он строится из множества лунок, которые группируются около заостренных возвышенностей, образующих замкнутые структуры. Причины таких изменений удастся понять, приняв во внимание особенности процесса измерений, выполняемых с помощью туннельного микроскопа.

Имитационное моделирование процесса сканирования

В методе имитационного моделирования процесса сканирования форма и размер острия иглы выбираются такими, при которых выполняется условие постоянства туннельного зазора между иглой и поверхностью.

Это эквивалентно тому, что туннельная оболочка находится в постоянном контакте со сканируемой поверхностью. Рассмотрим условия, при которых модель сканируемой поверхности, получаемая в рассматриваемом методе имитационного моделирования, совпадает с измеряемым нанорельефом.

При интерпретации измерений с учетом геометрии иглы в качестве поверхности исследуемого образца берется поверхность фигуры V_T :

$$V_T = \bigcup_{(x, y)} v_T(x, y),$$

где (x, y) — положение иглы в плоскости сканирования, $v_T(x, y)$ — внутренняя часть туннельной оболочки T при положении иглы в точке с координатами (x, y) . Поверхность фигуры V_T обозначим через S_T : $S_T = \partial V_T$.

Будем говорить, что рельеф S *восстановим*, если учет геометрии иглы при интерпретации измерений позволяет получить рельеф, который совпадает с исследуемым, т. е. $S_T = S$. Рассмотрим условия, при которых это достигается.

Назовем точку рельефа A *достижимой*, если существует такое положение туннельной оболочки (x, y) , при котором точка A лежит на ее поверхности ($A \in \partial v_T(x, y)$) и внутри $v_T(x, y)$ нет ни одной точки

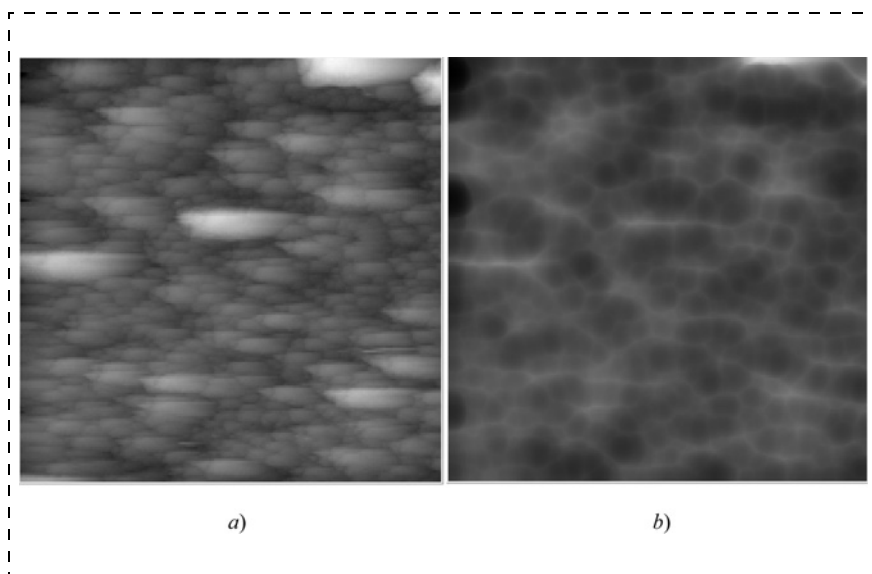


Рис. 1
Fig. 1

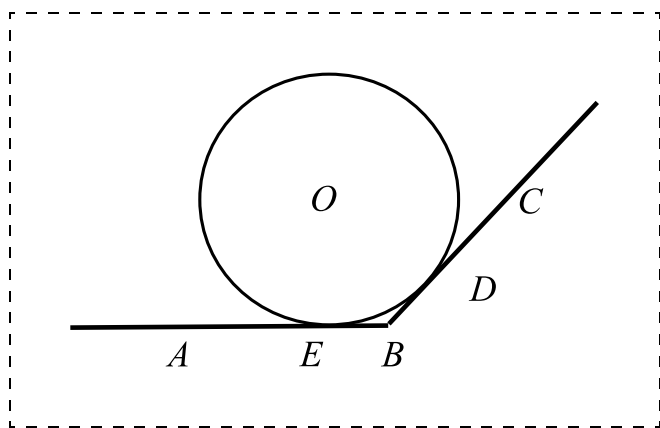


Рис. 2
Fig. 2

рельефа. Модель рельефа, получающаяся при интерпретации измерений с учетом геометрии острия иглы, совпадает с исходным рельефом тогда и только тогда, когда каждая точка исходного рельефа является достижимой. Справедливость этого утверждения следует из условия, что на изображении рельефа представлены те и только те точки поверхности, которых туннельная оболочка коснулась при сканировании. Заметим, что сформулированное утверждение не накладывает каких-либо ограничений на форму и размеры острия иглы.

Из сформулированного утверждения следует, что использование иглы с острием выпуклой формы позволяет однозначно восстановить форму любого участка рельефа, поверхность которого является выпуклой.

Критерий достижимости позволяет достаточно просто проверить, обеспечивает ли описанный выше способ интерпретации измерений восстановление формы участка поверхности. Если каждая точка участка достижима при измерениях, то участок восстанавливается полностью. Участки, которые содержат недостижимые для сканирования точки, однозначно восстановлены быть не могут. В модели поверхности участки, содержащие эти точки, замещаются сферической поверхностью туннельной оболочки. Такими участками являются поверхность впадин, диаметр которых меньше диаметра острия туннельной оболочки, и основания крутых изломов рельефа поверхности.

На рис. 2 показан один из таких случаев. На нем представлен излом рельефа ABC . Туннельная оболочка острия изображена в виде окружности с центром в точке O , E и D — точки касания. Окружность O не в состоянии коснуться вершины B , участков угла EB и BD . При сканировании эта область нанорельефа окажется неизмеренной. Рельеф EBD будет представлен лункой ED .

Рассмотренные особенности изображения нанорельефа, которые обусловлены технологией измерения, нетрудно найти на рис. 1, *b*. Изображение содержит достаточно большое число лунок, которые замещают те участки поверхности, которые не были достигнуты при сканировании.

Как отмечалось выше, выпуклые участки рельефа всегда достижимы независимо от их размера. По этой причине на изображении, полученном при интерпретации измерений с учетом геометрии острия иглы, форма и размеры выпуклых образований соответствуют реальным. Это обстоятельство приводит к улучшению видимости наноструктуры рельефа, что нетрудно заметить, непосредственно сравнивая изображения, представленные на рис. 1, *a* и рис. 1, *b*.

Заключение

Проведенное исследование показывает, что интерпретация измерений нанорельефа с учетом геометрии острия иглы позволяет восстановить реальную форму и размеры всех участков поверхности, которых туннельная оболочка иглы касается при сканировании. Участки поверхности, которых оболочка коснуться не в состоянии, представляются сферическими лунками. В области лунки модель поверхности, которая строится по результатам измерений, может отличаться от реальной поверхности. Изображения, получаемые методом имитационного моделирования процесса измерений, позволяют точнее выявить наноструктуру поверхности, чем при непосредственном отображении результатов измерений.

Список литературы

1. Востоков Н. В., Гапонов С. В., Грибков Б. А., Мастеров Д. В., Миронов В. Л. Сравнительные АСМ-СТМ исследования морфологии YBaCuO пленок различного катионного состава // Микросистемная техника. 2003. № 2. С. 24—28.
2. Колесов Д. В., Яминский И. В. Кантилеверы для сканирующей зондовой микроскопии // Нано- и микросистемная техника. 2007. № 11. С. 5—11.
3. Миронов В. Л. Основы сканирующей зондовой микроскопии. М.: Техносфера, 2004. 140 с.
4. Bukharaev A. A., Berdunov N. V., Ovchinnikov D. V., Salikhov K. M. Three-dimensional probe and surface reconstruction for atom force microscopy using deconvolution algorithm // Scanning microscopy. 1998. Vol. 12, N. 1. P. 225—234.
5. Карташев В. А., Карташев В. В. Способ определения формы и размеров острия иглы зондового микроскопа. Патент РФ № 2449294 от 2012 г.
6. Карташев В. А., Карташев В. В. Определение формы и размера острия иглы туннельного микроскопа // Нано- и микросистемная техника. 2010. № 10. С. 7—10.

Obtaining of Nanoscale Surface Images by Simulation of STM Measuring Process

The authors propose an approach to STM measurement of the nanoscale surfaces by means of a scanning probe with an extremely small tip size. Its control system keeps the distance between the tip and the surface with a very high accuracy and makes it possible to interpret a visualization of the direct measurements as a real image of the surface.

A mathematical simulation of the scanning process allows us to interpret the measurements more accurately, to evaluate the tip dimensions and then to increase the visualization accuracy by taking the tip geometry into account. The nanoscale images of the objects, obtained by the simulation process look different from the direct visualization images of the objects. Besides, the local nanoscale structures of the surfaces seem emphasized compared with their direct visualization.

The authors consider different conditions, which a surface should meet in order to make its simulation image coincide with the visualization of the original measured image. The article presents estimation of the accuracy of simulation of various sections of surfaces.

Keywords: tunnel microscopy, mathematical simulation of the measuring processes, accuracy of the nanoscale surface measurements

Introduction

For a visual research of the surfaces with a nanometer resolution [1] the tunnel microscopy is used. Its accuracy depends on the size of a needle point (tip). A widespread manufacturing technique [2,3] allows us to obtain tips with diameter up to several nanometers. Such needles make it possible to measure a surface with the accuracy up to 5 nm.

During research of the geometry of formations of a smaller size it is necessary to interpret the measurements taking into account the forms and sizes of a tip. In the atomic-force microscopy an increase of the resolution due to the tip geometry has been used for a long time [3, 4]. In the tunnel microscopy it was not applied, because there was no accessible way for definition of the form and size of a tip, which would ensure the accuracy of measurement of about shares of a nanometer. In the work [5] it is demonstrated, that this problem can be solved by the method of imitation modeling of the process of measurements. It is also possible to get acquainted with the method in the article [6].

Specific features of the technology of measurements

Measurement of a relief by a tunnel microscope is done by movement of a needle at a certain distance from a surface. That distance or gap (shares of a nanometer) is controlled by the force of the tunnel current set within the parameters of scanning. The gap is calculated proceeding from the force of the tunnel current by the existing formulas. During scanning the tunnel current is supported by the direct one in order to ensure a constant height of movement of the needle over the surface. Implementation of the condition ensures correspondence of the measurements to the real relief of the surface.

It would be convenient to consider the constancy of the tunnel gap in the course of scanning as sliding of the tunnel cover on the surface. The tunnel cover is a hypothetical figure, which is used in the process of modeling. Its surface is equidistant from the needle's surface

(the distance is the size of the tunnel gap). The continuity of the contact of the tunnel cover of the measured surface allows us to present a nanorelief as the surface of a figure, which is an integration of the inner tunnel covers in all the points of scanning. The surface constructed by this method takes into account both the geometry of the needle tip and the size of the tunnel gap. The surface constructed as a result of visualization of the measurements, does not take into account the parameters of a needle and conditions of measurements.

Distinctions in the nanorelief images

A comparison of the images received as a result of a direct visualization of the measurements and after the geometry of the needle tip is taken into account allows us to draw a conclusion concerning the considerable changes of the forms of small elements of the nanorelief. Those distinctions are visible, if we compare fig. 1, *a* and fig. 1, *b*.

Fig. 1 presents a section of the copper surface sputtered on a glass substrate. It was constructed by a direct visualization of measurements. Relative height of a point corresponds to its brightness (the lighter, the higher). The level difference is 11 nm. In the image certain spherical objects are distinguishable, which cover the surface completely. The sizes of the objects differ. In the figure it is easy to compare their sizes with each other. The dark intervals between the objects look as narrow cracks, into which the needle could not penetrate.

Fig. 1, *b* presents an image of the measurements, which is obtained by imitation modeling of scanning. The results of modeling show, that the relief was measured by a tip with diameter of 2,0 nm, while the tunnel gap was equal to 0,5 nm. Knowledge of the actual geometry of the tip allows us to present the measured surface more accurately.

Comparison of fig. 1, *a* and fig. 1, *b* allows us to reveal the distinctions in the images of the nanorelief. Fig. 1, *b* does not contain any spherical formations. It comprises a set of dimples, which are grouped around the pointed heights forming closed structures. The rea-

sons for changes can be understood, if we take into consideration the features of measurements by means of a tunnel microscope.

Imitation modeling of the scanning process

For imitation modeling of the scanning process the form and size of the needle tip are selected to satisfy the condition of constancy for the tunnel gap between the needle and the surface. This is equivalent to the fact that the tunnel cover is in a constant contact with the scanned surface. Let us consider the conditions, under which the model of the scanned surface, obtained in the considered imitation modeling, coincides with the measured nanorelief.

For interpretation of the measurements with account of the geometry of the needle, the surface of figure V_T is taken as the surface of the investigated sample:

$$V_T = \bigcup_{(x, y)} v_T(x, y),$$

where (x, y) is position of the needle in the scanning plane; $v_T(x, y)$ is part of the tunnel cover T at position of the needle in the point with coordinates (x, y) . We will designate the surface of figure $V_T(\partial V_T)$ through S_T : $S_T = \partial V_T$.

Let us say, that we will restore relief S , if the account of the geometry of the needle for interpretation of measurements, allows us to receive a relief, coinciding with investigated one, i.e.: $S_T = S$. Let us consider the conditions under which this is reached.

Let us consider point A of the relief as *achievable*, if there is a position of tunnel cover (x, y) , at which point A lies on its surface ($A \in \partial v_T(x, y)$) and inside $v_T(x, y)$ there is no a single point of the relief. During interpretation of the measurements with account of the geometry of the needle tip, the relief model coincides with the initial one only, when each point of the initial relief is achievable. The statement is justified by the fact that only those points of the surface are presented on the relief image, which were touched by the tunnel cover during scanning. It should be noticed, that the formulated statement does not impose any restrictions on the form and size of the needle tip.

From the statement it follows, that the use of a needle with a tip of a convex form allows us to restore unequivocally the form of any section of the relief, the surface of which is convex.

The criterion of accessibility allows us to verify simply enough, whether the described method of interpretation of measurements ensures a restoration of the form of a section of a surface. If each point of the section is achievable during the measurements, the section is restored completely. The sections, which contain points, inaccessible for scanning, unequivocally cannot be restored. In the surface model the sections containing those points, are replaced with the surface of the tunnel cover. Such sections are the surfaces of the pits,

the diameter of which is less than the diameter of the tip of the tunnel cover, and of the bases of the sharp bends of the surface relief.

Fig. 2 demonstrates one of such cases. It presents a bend of relief ABC . The tunnel cover of the edge is presented in the form of a circle with the centre in point O , E and D is the contact points. Circle O cannot touch the top of B , sections of corner EB and BD . During scanning this area of the nanorelief will appear not measured. Relief EBD will be presented by dimple ED .

The considered specific features of the nanorelief image, determined by the measuring technologies, can be found easily in fig. 1, *b*. The image contains a rather big number of dimples, replacing the sections of the surface, which were not reached during scanning.

As it was noted above, the convex sections of the relief are accessible irrespective of their size. For this reason, during the interpretation of measurements with account of the geometry of the needle tip, the forms and the sizes of the convex formations on the image correspond to the real ones. This leads to improvement of the relief nanostructure, which is easy to notice, if we compare images of fig. 1, *a* and fig. 1, *b*.

Conclusion

The research shows, that interpretation of the nanorelief measurements with account of the geometry of the needle tip allows to restore the real forms and sizes of the sections of the surface, which are touched by the tunnel cover of the needle during scanning. Those sections, which cannot be touched by the cover, are presented by the spherical dimples. In the area of a dimple, the model surface, which is constructed by the results of measurements, may differ from the real surface. The images, received by modeling of measurements, allow us to reveal more precisely the nanostructure of the surfaces, than in case of a direct display of the results.

References

1. Vostokov N. V., Gaponov S. V., Grikov B. A., Mastorov D. V., Mironov V. L. Sravnitelnye ASM-STM issledovaniya morfologii YBaCuO plenok razlichnogo kationnogo sostava (Comparison of ASM-STM investigation on morphology YBaCuO films with various cation composition), *Microsystemnaya tehnica*, 2003, no. 2, pp. 24–28.
2. Kolesov D. V., Yaminsky I. V. Cantilevery dlya scaniruyuzchey zondovoy microscopii (Cantilevers for scanning probe microscopy), *Nano- i microsystemnaya tehnica*, 2007, no. 11, pp. 5–11.
3. Mironov V. L. *Osnovy scaniruyuzchey zondovoy microscopii* (ABC of scanning probe microscopy). Moscow: Tehnosfera, 2004, 140 p.
4. Bukharaev A. A., Berdunov N. V., Ovchinnikov D. V., Salikhov K. M. Three-dimensional probe and surface reconstruction for atomy force microscopy using deconvolution algorithm, *Scanning microscopy*, 1998, vol. 12, no. 1, pp. 225–234.
5. Kartashev V. A., Kartashev V. V. Sposob opredeleniya formy i razmerov ostriya igly zondovogo microscopa (SPM tip shape and size measurement). RP Patent № 2449294, 2012.
6. Kartashev V. A., Kartashev V. V. Opredelenie formy i razmera ostriya igly tunnelnogo microscopa (SPM tip shape and size measurement). *Nano- i microsystemnaya tehnica*, 2001, no. 10, pp. 7–10.

А. А. Залуцкая¹, аспирант, an.zalutskaya@gmail.com, Н. Г. Савинский², канд. хим. наук, ст. науч. сотр., savinskii@yandex.ru, А. В. Проказников², д-р физ.-мат. наук, вед. науч. сотр., prokaznikov@mail.ru

¹ Ярославский государственный университет им. П. Г. Демидова

² Ярославский филиал Физико-технологического института РАН

СЕЛЕКТИВНОЕ РЕЗОНАНСНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НАНОСТРУКТУРИРОВАННЫМИ СИСТЕМАМИ

Поступила в редакцию 29.10.15

Исследуются оптические свойства полученных путем химического синтеза мелкодисперсных соединений различных веществ, которые демонстрируют резкие, узкие пики в спектрах оптической плотности, связанные с возбуждением плазмонных мод, локализованных в малых областях. Число, высота и положения пиков изменяются по ходу процесса химического синтеза, а также в зависимости от контролируемых параметров системы. Ширина общего основания спектров оптической плотности для синтезированных систем, состоящих из наночастиц, зависит от разброса размеров составляющих элементов, а также от взаимодействия плазмонных резонансов.

Ключевые слова: композитные материалы, химический синтез, плазмонные резонансы, спектры поглощения, теория Ми, периодические зависимости

Введение

Широкое применение наноразмерных металлических частиц в электрооптических миниатюрных датчиках, приборах на основе плазмонных свойств нанокластеров, химических катализаторах, при разработке сенсорных устройств, в том числе для детектирования различного рода биологических объектов, обусловили рост интереса к исследованию методов и технологий получения подобных объектов, а также к изучению их физико-химических свойств [1, 2]. Взаимодействие электромагнитного излучения с частицами малых размеров, а также зависимость свойств рассеянного света от внешнего окружения рассеивающей частицы предоставили в распоряжение исследователей мощный арсенал для детального изучения микро- и нанообъектов и закономерностей их взаимодействия с внешним окружением [3, 4]. Интерес к исследованию свойств наноструктурированных поверхностей связан также с возможностью создания миниатюрных квантовых генераторов (лазеров) (см., например, обзор [5]). Другим важным аспектом является тот факт, что кремний, являясь базовым элементом современной микроэлектроники, не обладает прямозонностью энергетического пространства, следствием чего являются низкая излучательная способность, относительно малое сечение поглощения света по сравнению с прямозонными полупроводниками и органическими красителями. Перспективным направлением является сочетание физических свойств квантовых точек с металлическими наночастицами (наноконкомпозитные системы) для возбуждения локализован-

ных плазмон-поляритонных мод [6]. Разного рода механизмы могут обеспечивать усиление оптических свойств структур "квантовые точки — металлические наночастицы". Кроме того, происходит усиление электрического поля вблизи металлической наночастицы (эффект ближнего поля). Наконец, имеет место непосредственная генерация носителей заряда в полупроводнике благодаря распространению поверхностных плазмонных мод.

Для исследования изолированных частиц сложной геометрии используются различные теоретические методы, например, метод дискретных диполей [7, 8]. Несмотря на то, что многие аспекты проблемы рассеяния света частицами малых размеров хорошо изучены [9, 10], наличие резонансных явлений, таких как коллективные электронные колебания электронов под действием света (см. например, [11]), названные плазмонными возбуждениями, открывают в настоящее время новые перспективы и нуждаются в более пристальном изучении, хотя имеется большое число научных и технологических работ, вошедших в том числе и в учебную литературу (см., например, [12]).

Одной из достаточно важных задач современной электроники является преобразование энергии внешнего электромагнитного излучения в полезную мощность энергетических источников либо в определенного вида сигналы, что может быть использовано в информационных технологиях. Решение этих и других задач может, в частности, обеспечить взаимодействие света с линейными и другими кластерами наночастиц. Это может позволить интегрировать современную кремниевую электронику с высокоэффективными плазмонны-

ми устройствами. Таким образом, физические аспекты, исследуемые в настоящей работе, важны для понимания принципиальных моментов, относящихся к конвертированию электромагнитных волн в каналы с резонансными эффектами взаимодействия света с веществом. Все это непосредственным образом связано с разработкой и созданием нового поколения электронных устройств, базирующихся на современных нанотехнологиях [1, 2] и сочетающих интегральные свойства эффективных плазмонных устройств с хорошо разработанной кремниевой элементной базой.

Все перечисленные аспекты обуславливают проведение более детальных исследований в области синтеза мелкодисперсных сред и изучение их взаимодействия с электромагнитным излучением, особенно в диапазонах, где возможно возбуждение плазмонных резонансов. Настоящая работа направлена на использование синтезированных химическим способом различных мелкодисперсных систем с наличием разномасштабных объектов для повышения эффективности взаимодействия внешнего электромагнитного излучения в области плазмонных резонансов [1, 2].

Существует два основных направления получения металлических наночастиц, которые условно можно разделить на физические и химические. Первая группа — это физические процессы испарения металла с последующей конденсацией на различные субстраты, механический размол относительно больших частиц в мельницах, ультразвуковая обработка в коллоидных растворах и ряд других методов.

Вторая группа технологий приготовления наночастиц — это химические, коллоидные методы [1, 2], основанные на химическом восстановлении ионов металлов или электрохимическом растворении металлического электрода в растворах, способствующих формированию металлических нанокластеров или агрегатов частиц, а также электрохимическое осаждение вещества в нанопористую матрицу и ее стравливание. Основные усилия в исследованиях химического синтеза нанокластеров сводятся к стабилизации образующихся в реакции наноагрегатов с использованием различных органических стабилизаторов [3]. В работе [3] описаны методы получения наночастиц кобальта из хлорида кобальта в присутствии стабилизаторов, при этом формируются наночастицы с разбросом характерных размеров в пределах 2...11 нм. Форма частиц в значительной мере зависит от параметров синтеза.

Целью настоящего исследования является создание поглощающих покрытий, обладающих высокой селективностью и преобразующих излуче-

ние в плазмонные моды различных длин волн, для использования, в частности, в фотовольтаических устройствах.

Экспериментальная часть

Для синтеза веществ, обладающих селективными поглощающими свойствами, в настоящей работе были использованы следующие химические реактивы: метоксиполиэтиленгликоль-550 (МРЕГ — methoxy polyethyleneglycol-550, далее — МПЭГ) фирмы Fluke, нитрат кобальта гексагидрат квалификации ХЧ, нитрат серебра квалификации ОСЧ, вода деионизованная 18 МОм/см. Синтез оксида графена и его очистка проводились по методике, описанной в работе [13]. Все реактивы были использованы без дополнительной очистки. Одноканальный УФ спектрофотометр СФ-56 фирмы "ЛОМО" использовался для исследования спектров поглощения в ультрафиолетовом и видимом диапазонах.

Синтез наноструктурированного соединения кобальта проводился в растворе МПЭГ и соединения нитрата кобальта $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$, а также натрий-додецилбензинсульфоната (SDBS — sodium dodecyl benzene sulfonate). Затем на второй стадии воздействовали микроволновым (СВЧ) излучением в течение 1...15 мин. Для экспозиции образцов СВЧ была использована печь с частотой 2,54 ГГц модели PANASONIC NM-GS597M. Мощность печи регулировалась инвертором в интервале 1...0,2 кВт. Для измерения температуры использовались бесконтактные термометры TESTO-845. Для обеспечения безопасной работы оптический ввод для термометров TESTO в СВЧ печь был выполнен в виде запредельного волновода с коэффициентом ослабления в 60 дБ.

Этот способ синтеза наноструктурированного соединения кобальта получил название "микроволнового полиольного" метода. Металлические частицы, образующиеся в ходе реакции восстановления полиолом поглощают микроволновую энергию, что приводит к явлению быстрого локального разогрева раствора вокруг частицы, известного как поверхностная поляризация. Этиленгликоль, как среда для синтеза, хорошо известен и является одним из широко распространенных методов препаративного получения наноразмерных материалов [14]. Этиленгликоль широко используется для синтеза наночастиц металлов ввиду набора уникальных физических свойств: высокой константы диэлектрической проницаемости и, как следствие, растворимости в нем многих ионных соединений, в частности солей металлов, высокой температуры кипения (195 °С при атмосферном давлении), которая предполагает проведение синтеза с неорганическими солями при относительно высоких тем-

пературах. Таким образом, этиленгликоль является сильным восстанавливающим агентом.

Одной из разновидностей полиольного синтеза является использование полиэтиленгликолей (ПЭГ) различной степени полимеризации, при этом низкомолекулярные представители ПЭГ-200, ПЭГ-400, ПЭГ-600 являются жидкостями, более высоких степеней полимеризации — твердыми веществами. Одним из наиболее сильных восстанавливающих агентов среди полиолов является монометиловый эфир полиэтиленгликоля — МПЭГ, который использован в данной работе для синтеза нанометаллических кластеров кобальта [14] и серебра [15]. Химическое окружение иона металла в начальной стадии реакции восстановления определяющим образом влияет на размер и дисперсию размеров нанокластеров металлов. В полиольном процессе МПЭГ $(\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{-H})$ выступает и как восстановитель, и как мягкая ("soft") матрица для металлических частиц-нанокластеров. Он генерирует свободные радикалы под действием УФ облучения, которые восстанавливают ионы металлов.

Процесс восстановления солей металлов в металлических нанопорошки в среде полиолов, в том числе с использованием микроволнового излучения, хорошо известен, т. е. применение микроволнового нагрева для синтеза металлических наночастиц является в настоящее время разработанным методом. При этом необходимо отметить некоторые особенности этого процесса. Энергия фотона микроволнового диапазона составляет порядка 10^3 Дж/моль, что в 25...40 раз меньше энергии разрыва молекулярной связи. Энергия микроволн активирует некоторые колебательные моды групп связей в молекуле, которые можно назвать "антенными группами". Нет никакого иного влияния микроволновой энергии на механизм протекания химической реакции, кроме тепловой диссипации микроволновой энергии.

Образцы многослойного оксида графена были синтезированы модифицированным методом Хаммерса и затем идентифицированы методами рентгенофазовой дифракции, элементного анализа с использованием энергодисперсионного метода, спектроскопией комбинационного рассеяния, а также методом ИК-Фурье-спектроскопии. Образцы материалов использовались в виде порошков, таблеток, пленок. Спектры комбинационного рассеяния оксида графена записаны с использованием спектрометра EnSpector-R532 в диапазоне $140\ldots 6030\text{ см}^{-1}$ и разрешением 6 см^{-1} , число сканов 200...300. Рентгенофазовый анализ проводился с использованием порошкового рентгеновского дифрактометра ARL XTRA-Termo-Techno. Результаты вышеприведенных методов анализа, а также

снимки, полученные с помощью электронного микроскопа, свидетельствуют о формировании соединения оксида графена.

Методика получения нанокластеров металлов в растворе МПЭГ достаточно проста. Сначала навеска азотнокислого серебра, взвешенная с точностью 10^{-4} г, растворялась в минимальном количестве деионизованной воды, к раствору приливалось необходимое количество МПЭГ. Концентрация пробы составляла 60 мМ/л и определялась фотометрически по калибровке. Жидкостная кювета толщиной 1 см, снабженная магнитной мешалкой с исследуемым раствором, устанавливалась в кюветное термостатируемое отделение спектрофотометра СФ-56 фирмы "Ломо-Спектр". Приготовленный реакционный раствор использовался немедленно, так как реакция при комнатной температуре идет относительно быстро. Через определенные временные промежутки записывались спектры поглощения для раствора. При использовании нитрата кобальта предварительного растворения в воде не требуется (достаточно кристаллизационной воды), растворение происходит прямо в МПЭГ. Затем на второй стадии проводилось экспонирование микроволновым излучением в течение 1...15 мин при мощности 1 кВт. После каждого экспонирования снимались спектры поглощения.

Каждый этап воздействия микроволнового излучения на исследуемую систему сопровождался снятием спектров поглощения на стандартной установке СФ-56, излучение в которой генерируется лампами и разлагается в спектр дифракционной решеткой. Типичный окончательный результат химического синтеза с воздействием микроволновым излучением представлен на рис. 1. Как хорошо заметно на фотографиях, имеют место структурные образования различных масштабов от 10...20 нм вплоть до 1 мкм, причем, как это представлено на рис. 1, *a*, внутри объектов размером порядка 100 нм содержится большое число плотноупакованных объектов размером 10...20 нм, покрытых оболочкой. На рис. 1, *b—d* представлен вид сформировавшейся структуры на различных масштабах. В целом сформированная структура имеет вид неупорядоченного фрактала.

Нанокластеры серебра формировались по схожей методике, т. е. фотолизом раствора, содержащего ионы серебра и МПЭГ в присутствии воды. Отметим, что молекулы МПЭГ в ходе последовательных цепочек химических реакций превращаются в мощный восстанавливающий реагент, способный к восстановлению ионов серебра до металлического состояния. Восстановленные до металлического состояния атомы серебра выступают в качестве центров нуклеации и роста металлических кластеров за счет восстановления остающих-

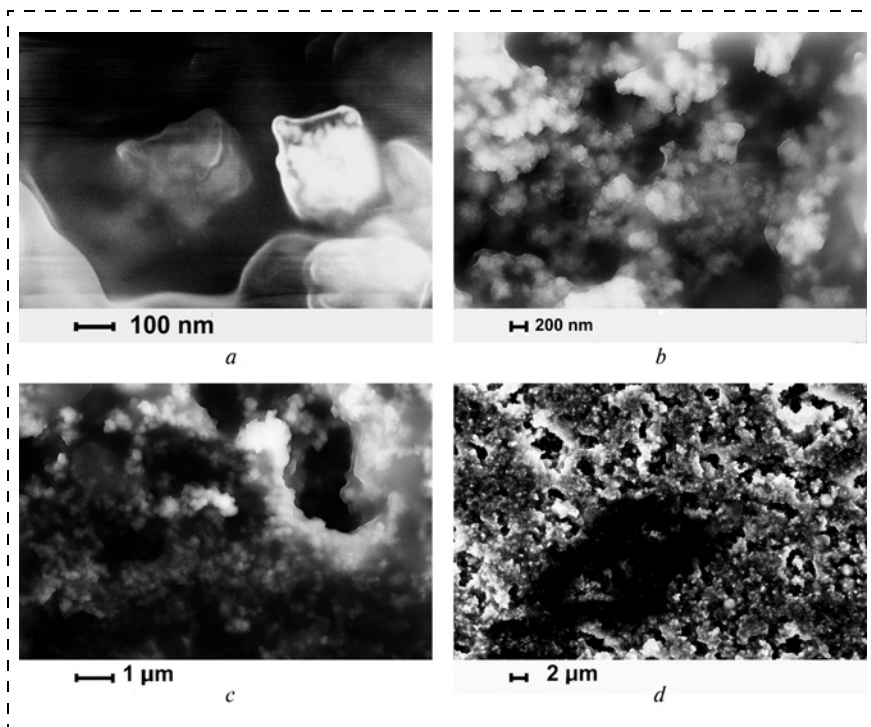


Рис. 1. Фотографии кластерных структур кобальта, полученные химическим путем, для различных масштабов

Fig. 1. Photos of the chemically received cluster structures of cobalt for various scales

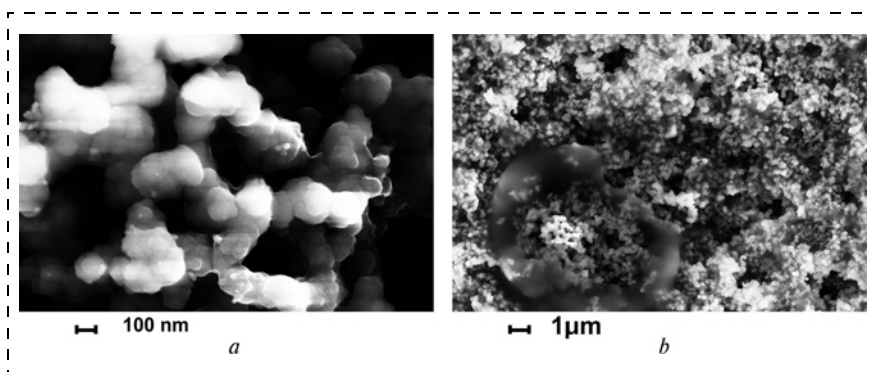


Рис. 2. Фотографии кластерных структур серебра, полученные химическим путем, для разных масштабов

Fig. 2. Photos of the chemically received cluster structures of silver for different scales

ся в растворе ионов. Эта стадия процесса носит автокаталитический характер. Потенциал восстановления — ион металла/атом металла и ион металла/кластер металла — становится более отрицательным, чем ион металла/массивный металл. Результатом последовательных химических процессов является формирование кластерной структуры металла. Фотографии серебряных нанокластеров представлены на рис. 2.

Спектры поглощения для нитрата кобальта, снятые после каждого этапа формирования материала при экспонировании микроволновым излучением, представлены на рис. 3, а. Оптическая

плотность D , характеризующая поглощение падающего излучения, имеет явно выраженные максимумы, которые в ходе воздействия микроволнового излучения модифицируются в серию узких, резких резонансов. На начальной стадии спектр поглощения имеет два характерных максимума в областях порядка 300 и 536 нм, что характерно для соединения нитрата кобальта $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$. После обработки образца микроволновым излучением в течение нескольких минут происходит характерное уширение пика с началом роста в области 450 нм, который заканчивается в области 650 нм (см. рис. 3, а графики с 1 по 8). Серия графиков 1—8 расположена достаточно плотно, так что некоторые графики практически неразличимы и на рис. 3, а не отмечены. При обработке образца микроволновым излучением в течение примерно 15 мин происходят радикальные изменения в спектрах поглощения, на которых появляются несколько узких резких максимумов, причем основной широкий базовый максимум уширяется практически от 300 до 900 нм (на рис. 3, а график 9). Спектрометрический прибор имеет ограничение по верхнему пределу оптической плотности, поэтому представленная на рис. 3 оптическая плотность обрывается на значении $D = 7$.

В эксперименте измерялась оптическая плотность мелкодисперсных сред на основе синтезированных соединений. Оптическая плотность связана с поглощающими и рассеивающими свойствами среды и определяется согласно формуле

$$D(\lambda) = \lg(1/T(\lambda)),$$

где $T(\lambda)$ — коэффициент пропускания; λ — длина волны падающего излучения.

Величина оптической плотности $D(\lambda)$ является суммой по различным вкладам (см., в частности, [16]):

$$D(\lambda) = \sum_k \sigma_k^{ext}(\lambda, R_k) \frac{n_k(R_k)}{V} \lg(e)d, \quad (1)$$

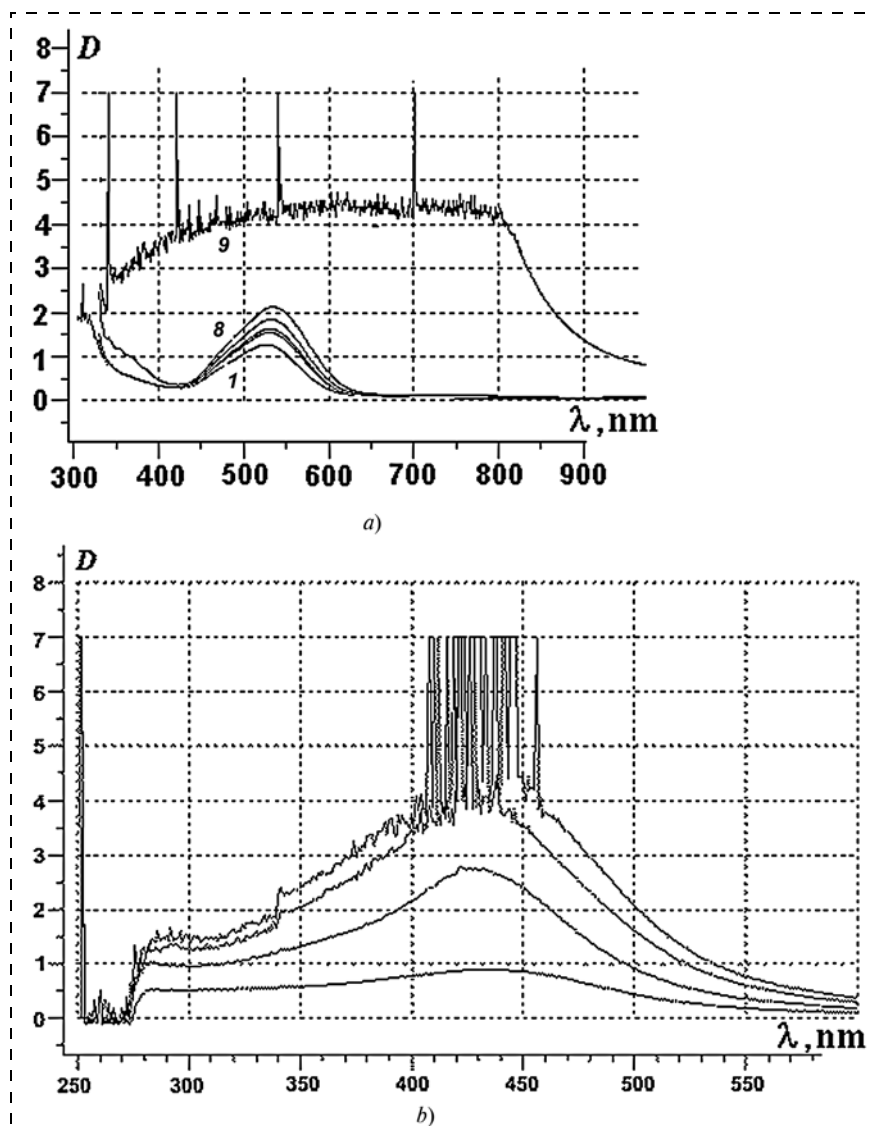


Рис. 3. Характерные спектры поглощения для синтезированного образца для раствора МПЭГ с концентрацией 0,075 М/л $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Время экспозиции микроволнового излучения: 1 — 0 мин, 2 — 1 мин, 3 — 2 мин, 4 — 3 мин, 5 — 5 мин, 6 — 7 мин, 7 — 10 мин, 8 — 13 мин, 9 — 15 мин (а). Спектр синтезированного коллоидного раствора с наночастицами серебра с соответствующей разверткой по времени (возрастание снизу вверх): 4, 17, 28, 32 мин (б)

Fig. 3. Characteristic absorption spectra of a synthesized sample for MPEG solution with concentration of 0,075 M/l $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Time of exposure to a microwave radiation: 1 — 0 min, 2 — 1 min, 3 — 2 min, 4 — 3 min, 5 — 5 min, 6 — 7 min, 7 — 10 min, 8 — 13 min, 9 — 15 min (a). Spectrum of the synthesized colloidal solution with nanoparticles of silver with the corresponding time sweep (from bottom up) 4, 17, 28, 32 min (b)

где n_k/V — концентрация частиц с характерным размером R_k ; d — толщина образца, σ^{ext} — сечение экстинкции.

Типичные спектры поглощения для сформированной кластерной структуры на основе серебра с наличием резкого максимума в области 423 нм представлены на рис. 3, б, 4, а (ср. с данными из работы [2]). Отметим, что структура на основе кластеров серебра в целом состоит из достаточно близких по размерам сферических формирований (см. рис. 2, а), в то время как структура на основе

кобальта представляет собой неоднородные по составу и расположению кластеры (см. рис. 1, а). Динамика формирования исследуемых в данной работе кластерных структур характеризуется наличием ряда ярко выраженных этапов.

Через достаточно большой промежуток времени спектр коллоидного раствора серебра имеет только один резкий резонансный пик (рис. 4, а). Таким образом, динамика формирования коллоидных растворов ряда соединений проходит этапы, которые характеризуются постепенным формированием структур, активных в соответствующей части электромагнитного спектра, их взаимодействием со своим окружением, а затем образованием достаточно однородных объектов. В соединениях типа нитрата кобальта окончательно сформированная наноструктурированная среда характеризуется несколькими резкими максимумами, а среда на основе серебряных наносфер дает один резкий пик.

Для анализа и интерпретации результатов проведенных исследований необходимо отметить несколько обнаруженных на эксперименте закономерностей. Как это хорошо видно на рис. 1 и 2, сформированная структура имеет достаточно сложное строение, так что объекты более мелкого размера формируют структуры с большим размером. Вид соответствующих спектров поглощения, представленных на рис. 3, свидетельствует о том, что одновременно активными являются не-

сколько мод с различной частотой, имеющих чрезвычайно малую ширину, которые расположены на более широкой спектральной линии (примерно от 300 до 900 нм на рис. 3, а). Резкие максимумы пиков поглощения соответствуют $\lambda_1 \approx 349$ нм ($\omega_1 \approx 5,38 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $E \approx 3,5$ эВ), $\lambda_2 \approx 425$ нм ($\omega_2 \approx 4,43 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $E \approx 2,9$ эВ), $\lambda_3 \approx 540$ нм ($\omega_3 \approx 3,48 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $E \approx 2,3$ эВ), $\lambda_4 \approx 700$ нм ($\omega_4 \approx 2,69 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $E \approx 1,8$ эВ), где ω и E — частота и энергия излучения. Это свидетельствует о наличии плазмонных резонансов в исследуемой

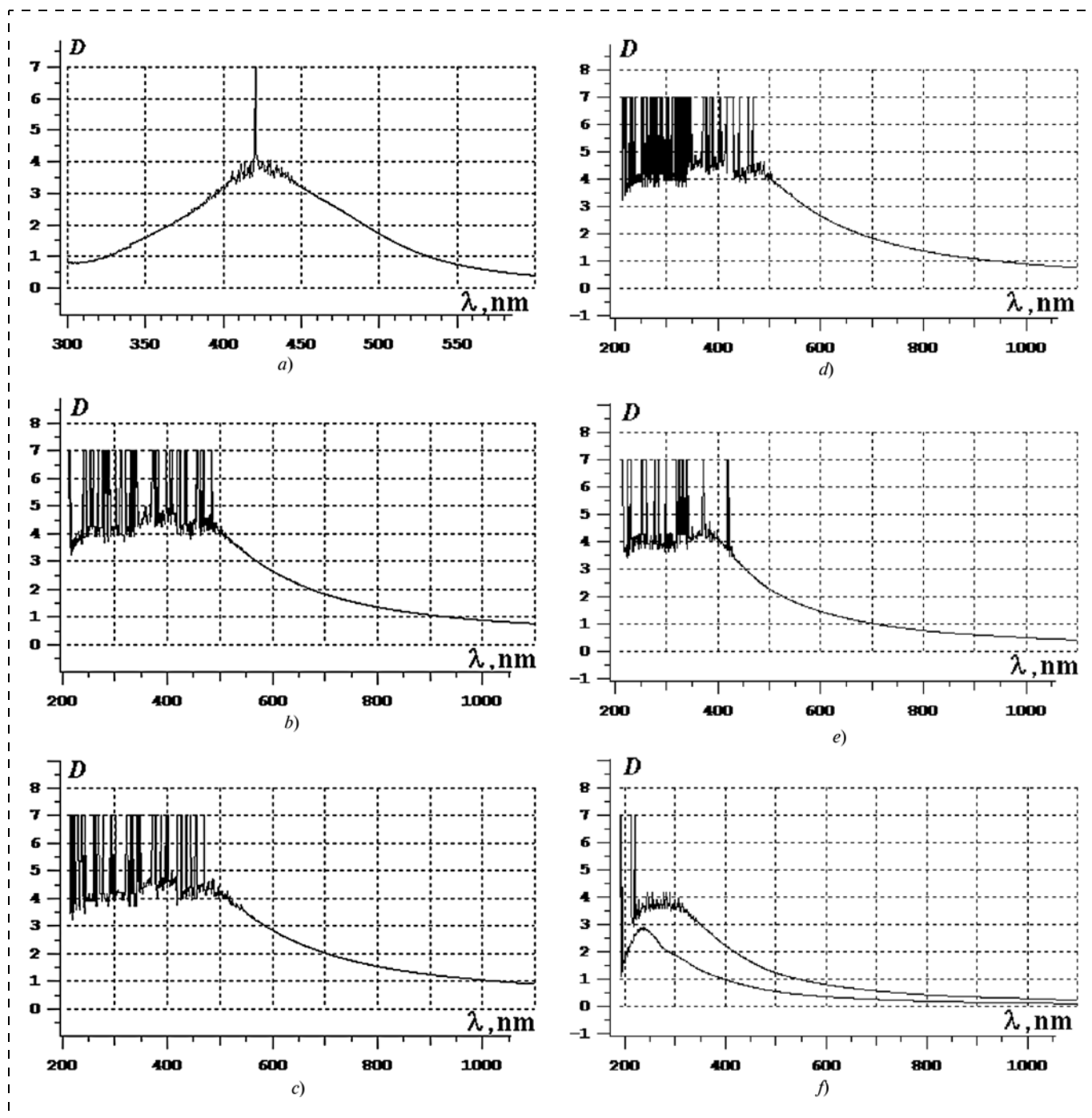


Рис. 4. Спектр поглощения синтезированного коллоидного раствора с наночастицами серебра через полтора часа после начала синтеза — (a). Спектры поглощения оксида графена после нескольких суток хранения (b); после перемешивания вслед за этапом b — (c); после перемешивания вслед за этапом c — (d); после разбавления в соотношении 1:1 по объему — (e); сверху вниз графики соответствуют последовательному разбавлению раствора в соотношении 1:1 по объему — (f)

Fig. 4. The absorption spectrum of the synthesized colloidal solution with nanoparticles of silver in one and a half hour after synthesis — (a). Absorption spectra of the graphene oxide after several days of storage (b); after hashing after stage b — (c); after hashing after stage c — (d); after dilution in the ratio of 1:1 by volume — (e); from top down, the diagrams correspond to a consecutive dilution of the solution in the ratio of 1:1 by volume — (f)

системе, расположенных в представленном интервале длин волн. Рис. 4, b–d представляет данные, свидетельствующие о том, что после перемешивания коллоидного раствора оксида графена соединение твердых частиц раствора происходит каждый раз несколько по-иному, что отражается на

различном расположении резких пиков в спектрах поглощения для разных перемешиваний. Разбавление раствора оксида графена приводит к постепенному уменьшению как числа резких пиков, так и их величины вплоть до полного исчезновения (рис. 4, d–f).

Теоретический анализ результатов

Опираясь на обнаруженные экспериментальные закономерности, естественно положить в основу рассматриваемой модели зависимость ее параметров, обуславливающих поглощение энергии излучения, т. е. расположение пиков поглощения и их ширину, как от размеров рассеивателей, так и от их взаимодействия между собой. Сложность интерпретации представленных результатов состоит в том, что традиционные классические подходы, основанные на моделях Друдэ — Лоренца — Зоммерфельда, не учитывают как размерные эффекты, обусловленные поперечными размерами составляющих систему частиц, так и взаимодействия между этими элементарными рассеивателями (см., например, [16, 17]). Современные методы, достаточно глубоко разработанные в научной литературе, являются последовательными шагами в более детальном описании сложных систем, представляющих собой ансамбли взаимодействующих рассеивателей с нанометровыми поперечными размерами (см. [7; 18–21]).

Одной из основных характеристик диссипативных свойств среды является коэффициент поляризации $\alpha(\omega)$, который зависит от частоты падающего излучения. Задача нахождения $\alpha(\omega)$ для бесконечной решетки поляризуемых дискретных диполей была решена в работе [22]. Полученное выражение зависит от параметра, описывающего расстояние между рассеивающими центрами, а также от поляризации падающего излучения. Выражение для коэффициента поляризации в этом случае характеризуется сдвигом характерных частот, а также влиянием воздействия окружения на диссипативные свойства. Отметим, что уже для картины взаимодействующих посредством упругих сил классических осцилляторов имеет место решение со сдвигом резонансной частоты в зависимости от интенсивности взаимодействия со своим окружением [23]. Сдвиг резонансной частоты также характерен и для модели среднего поля, основанной на соотношении Клаузиуса — Моссоги [24]. Общая идея подхода для оценок результатов настоящей работы опирается на аспекты, изложенные в ряде работ и, в частности, в работе [19], где изложен подход к расчету поляризации отдельной частицы и сечения экстинкции в зависимости от свойств окружения рассеивающей частицы. Полученный результат свидетельствует о том, что имеет место сдвиг частоты максимума поглощения, а также изменение ширины линии спектра. Более подробный анализ полученных соотношений приведен в работе [25], в которой представлено ана-

литическое выражение для поляризации среды с учетом взаимодействия рассеивающей диссипации частицы со своим окружением. Это выражение приводит к несимметричной форме линии при расчете ее характеристик. Окончательный результат для описания диссипативных свойств всего ансамбля частиц получается суммированием по всем частицам, рассеивающим энергию падающего излучения.

В стандартном подходе, предложенном Ми, решаются уравнения Максвелла внутри и вне малой рассеивающей частицы и сшиваются на границе решения для поля внутри и вне сферы. В этом подходе может быть описан сдвиг резонансной частоты, а также характеристики затухания, т. е. мнимая добавка в поляризационные свойства.

Сечение рассеяния излучения на металлической сфере, согласно теории Ми, может быть представлено в виде [10]

$$\sigma^{sca} = \frac{2\pi c^2}{m_2 \omega^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \{ |a_n(x, mx, m)|^2 + |b_n(x, mx, m)|^2 \}, \quad (2)$$

где c — скорость света;

$$a_n(x, mx, m) = \frac{\psi'_n(mx)\psi_n(x) - m\psi'_n(x)\psi_n(mx)}{\psi'_n(mx)\zeta_n(x) - m\zeta'_n(x)\psi_n(mx)}; \quad (3)$$

$$b_n(x, mx, m) = \frac{m\psi'_n(mx)\psi_n(x) - \psi'_n(mx)\psi_n(x)}{m\psi'_n(mx)\zeta_n(x) - \zeta'_n(x)\psi_n(mx)}; \quad (4)$$

$$\psi_n(z) = z j_n(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} J_{n+1/2}(z); \quad (5)$$

$$\zeta_n(z) = z h_n^{(1)}(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} H_{n+1/2}^{(1)}(z); \quad (6)$$

$\psi_n(z)$, $\zeta_n(z)$ — функции Риккати — Бесселя и Риккати — Ханкеля; $j_n(z)$, $h_n^{(1)}(z)$ — сферические функции Бесселя и Ханкеля; $J_{n+1/2}(z)$, $H_{n+1/2}^{(1)}(z)$ — функции Бесселя и Ханкеля полуцелого порядка; $x = 2\pi r/\lambda = 2\pi r m_2/\lambda_{vacuum}$; $m = m_1/m_2$; m_1 , m_2 — показатели преломления сферы и окружающей среды соответственно; r — размер рассеивающей частицы.

В пределе малого параметра $x = kr$ (где k — волновой вектор) из приведенных выше формул получаем [10]:

$$a_1 = ix^3(1 + tx^2 - ix^3), \quad b_1 = isux^5, \quad (7)$$

где

$$s = \frac{2}{3} \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}; \quad t = \frac{3}{5} \frac{m^2 - 2}{m^2 + 2}; \quad u = \frac{1}{30} (m^2 + 2). \quad (8)$$

Ограничиваясь первым слагаемым в (7), получаем из формулы (2) известное выражение для сечения рассеяния света на малой сфере [10]:

$$\sigma^{sca} = \frac{8\pi r^2}{3} \left| \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right|^2 x^4, \quad (9)$$

где принято $m_1 = n$, $m_2 = 1$.

В другом широко представленном в научной литературе подходе (в электростатическом пределе) уравнение Клаузиуса — Моссо (для видимого спектра с учетом частотной дисперсии — уравнение Лорентц — Лоренца) используется совместно с моделью затухающих осцилляторов в периодическом внешнем электромагнитном поле. В этой модели легко объясняется сдвиг резонансной частоты при взаимодействии локального осциллятора со своим окружением.

В работе [26] сопоставляются отмеченные выше два подхода. Поляризуемость рассеивающей сферической частицы с учетом радиационного затухания и динамической деполяризации выражается формулой [26]

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 - k^2 \alpha_0 / r - 2/3 i k^3 \alpha_0}, \quad (10)$$

где α_0 — квазистатическая поляризуемость, определяемая соотношением [25] $\alpha_0 = (\varepsilon - 1)r^3/(\varepsilon + 2)$; r — радиус сферической частицы; k — модуль волнового вектора, связанного с частотой соотношением $k = \omega/c$; ε — диэлектрическая проницаемость частицы. Для дисперсионной зависимости $\varepsilon(\omega)$ использовалась стандартная модель Друде, так что $\varepsilon(\omega) = 1 - \omega_b^2/(\omega(\omega + i\gamma_d))$, после чего выражение (10) с использованием упомянутых соотношений преобразуется к виду [25]

$$\alpha = \frac{-1/3 \omega_b^2 r^3}{\omega^2 \left(1 + \frac{\omega_b^2 r^2}{3c^2} \right) - \frac{\omega_b^2}{3} + i\omega \left(\gamma_d + \frac{2\omega_b^2 \omega^2 r^3}{9c^3} \right)}, \quad (11)$$

где γ_d — коэффициент диссипации; ω_b — частота объемного плазмона.

Для получения исходной формулы для оценок наблюдаемого эффекта используется тот факт, что взаимодействие частицы со своим окружением,

т. е. с другими частицами, находящимися в ее близости, приводит к поляризации среды:

$$P = E_0/(\alpha^{-1} - S),$$

где E_0 — интенсивность электрической составляющей электромагнитного поля падающей волны; S — сумма, учитывающая дипольное взаимодействие между соседними частицами [19].

Взаимодействие между собой, в частном случае, регулярно расположенных рассеивателей дает вклад как в сдвиг резонансных частот, так и в диссипативные свойства системы.

Сечение экстинкции может быть представлено в виде [19]

$$\sigma^{ext} = \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(\mathbf{E}_{inc,j}^* \cdot \mathbf{P}_j), \quad (12)$$

где k — модуль волнового вектора излучения; E_0 — амплитудное значение напряженности электрического поля падающей волны; $\mathbf{E}_{inc,j}^*$ — напряженность электрического поля падающей волны; $\mathbf{P}_j$ — вектор поляризации среды для j -й рассеивающей свет частицы; N — общее число рассеивающих частиц, суммирование ведется по рассеивающим частицам, нумеруемым индексом j . Для одинаковых частиц получим сечение экстинкции в виде [19]

$$\sigma^{ext} = 4\pi N k \text{Im}(P/E_0). \quad (13)$$

Сечение экстинкции в расчете на одну сферическую частицу σ_e (см., например, [27]) выражается соотношением $\sigma_e = \sigma^{ext}/N$. Поскольку P пропорциональна E_0 , то σ_e пропорционально поляризуемости: $P = \alpha E_0/(1 - \alpha S)$.

Подчеркнем, что практически все представленные в научной литературе подходы приводят к похожей форме линии спектра, с различным расположением максимумов и ширин линий. Линия имеет несимметричную форму, что заметно на представленных рис. 3, 4. Используя этот факт, приходим к модельному выражению для величины, описывающей взаимодействие среды с электромагнитным излучением.

Введем величину $\tilde{Q}_e = \sigma_e/(4\pi k r^3)$. Выражение для безразмерной величины эффективности рассеяния света $\tilde{Q}_e$ может быть преобразовано к модельному виду, содержащему безразмерные величины:

$$\tilde{Q}_e = \sum_i \frac{[\tilde{\omega}(\gamma^{(0)} + c\tilde{\omega}^2) + \Gamma_i^{(0)}]}{[\tilde{\omega}^2(1 + a) - 1/3 - \Omega_i^{(0)}]^2 + [\tilde{\omega}(\gamma^0 + c\tilde{\omega}^2) + \Gamma_i^{(0)}]^2}, \quad (14)$$

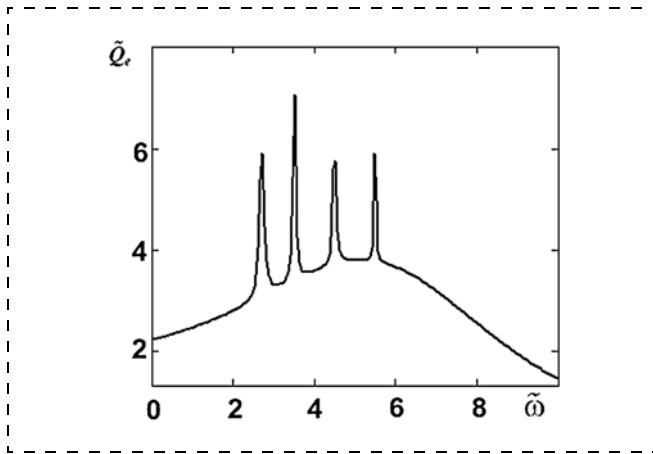


Рис. 5. Рассчитанный по формуле (14) спектр системы как функция эффективности от частоты падающего света в единицах 10^{15} с^{-1}

Fig. 5. Calculated by formula (14) the spectrum of the system as the effectiveness function of the frequency of the incident light in units 10^{15} s^{-1}

где суммирование ведется по параметрам, соответствующим максимумам поглощения, $\tilde{\omega} = \omega/\omega_b$ — обезразмеренная частота падающего электромагнитного излучения; $\gamma^{(0)} = \gamma/\omega_b$ — безразмерный параметр, описывающий затухание; $\Omega_i^{(0)}$ — безразмерный параметр, включающий реальную часть взаимодействия выделенной i -й частицы со своим окружением, которая испытывает резонансное поглощение на данной частоте излучения; $\Gamma_i^{(0)}$ — безразмерный параметр, включающий мнимую часть взаимодействия выделенной i -й частицы со своим окружением, испытывающей резонансное поглощение; a, c — безразмерные параметры. Выражение (14), по сути, согласуется с выражением из работы [25]. Отметим, что параметры $\Omega_i^{(0)}, \Gamma_i^{(0)}$, содержат, в частности, соответственно $\text{Re}(S)$ и $\text{Im}(S)$, описывающие суммарные вклады близко расположенных элементарных рассеивателей, которые могут быть как положительными, так и отрицательными (см., например, [8, 18, 19]). Это выражение определяет положение и форму наблюдаемых максимумов на приведенных спектрах рис. 3, 4. Отметим, что в аналогичных, достаточно удобных единицах плазменной частоты ω_b измеряются также аргументы в работе [28].

Подходы, основанные на квантово-механических схемах, требуют нахождения собственных значений матриц для оператора дипольного взаимодействия между рассеивателями [29—31]. Затем по определенной схеме может быть рассчитана форма линии поглощения, а также распределение интенсивности электромагнитного поля по распределению рассеивателей. Весовой фактор, определяющий форму линий спектров, в этом случае имеет лоренцевский вид. Подобные подходы дают воз-

можность описать локализованные плазмоны, в частности во фрактальной среде [29—31].

Таким образом, можно сделать вывод, что для данного класса процессов имеет место в целом несимметричная форма характерных линий спектров, которые представлены на рис. 3, 4. Сдвиг положения максимумов и ширина каждой линии определяется взаимодействием со своим окружением. Множественность пиков определяется изолированностью локализованных в разных местах скоплений элементарных рассеивателей.

Результаты вычислений, проведенные согласно формуле (14), представлены на рис. 5. Максимумы величины $\tilde{Q}_e$ совпадают с максимумами спектра на рис. 2, а для кобальта. Спектр, представленный на рис. 5, отражает основные закономерности экспериментально полученной зависимости (см. рис. 3, а). Общее основание спектра не является лоренцевской кривой, аналогично приведенной зависимости на экспериментальной кривой (рис. 3, а). Параметры $\Omega_i^{(0)}$, описывающие положение максимумов зависимости, входят в выражение (14) [32]. Эти параметры вполне согласуются с имеющими физический смысл величинами, охватывая спектр величин от единиц до нескольких десятков (в единицах $\omega_b \sim 10^{15} \text{ с}^{-1}$). Величина $\Gamma_i^{(0)}$, связанная с диссипацией энергии, на два-три порядка меньше величины $\Omega_i^{(0)}$ для узких пиков и в несколько раз меньше соответствующей величины для широкого пика, являющегося основанием всей зависимости. Для широкого пика имеет место "весовой множитель", так как пики связаны с числом частиц соответствующих размеров и формы, а общее основание обусловлено взаимодействием света со всем образцом.

Используемое в настоящей работе для численных оценок значение $\omega_b \sim 10^{15} \text{ с}^{-1}$ для характерной частоты коллективных плазменных колебаний базируется на нескольких соображениях и отличается от обычно приводимого порядка этой величины для металлов $\omega_b \sim 2\pi \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$. Во-первых, форма частиц может отличаться от сферической, для которой справедливы приведенные выше формулы. В случае вытянутой формы частицы имеет место соотношение [10]:

$$\omega_s^2 = L\omega_b^2/[\epsilon_m - L(\epsilon_m - 1)],$$

где L — длина вытянутой частицы, $0 < L < 1$; ϵ_m — диэлектрическая проницаемость среды, т. е. резонансная частота будет меньше частоты объемного плазмона ($\omega_b \sim 2\pi \cdot 10^{16} \text{ с}^{-1}$). Зависимости резонансных частот от формы частиц, в частности, приведены в работах [1, 2]. Во-вторых, могут возбуждаться различные моды плазменных колеба-

ний для совокупности наночастиц, имеющие различные законы дисперсии и резонансные частоты [33, 34]. Резонансные частоты для различных мод примерно на порядок меньше ω_b [34].

Отметим, что ширина пиков, представленных на рис. 5, имеет несколько большие значения, чем это следует из экспериментальных данных (см. рис. 3, 4). Причиной появления узких, резонансных пиков могут быть также локализованные, плазмонные моды [1]. Как отмечалось в работе [1], имеется прямая аналогия между спектрами локализованных плазмонов и спектрами атомов и молекул. Решение задачи об энергетическом спектре заряженного сферического кластера приводит к выражениям для основных характеристик (уровней энергии, волновых функций), аналогичным таковым для атомов и молекул [1]. В работе [35] проведен учет обычно отбрасываемых членов в теории Ми рассеяния электромагнитного излучения малыми сферическими частицами и показано, что эти слагаемые могут обуславливать чрезвычайно узкие пики в зависимости от $q = an_m\omega/c$, где a — характерный размер частицы, причем характерная ширина пиков определяется согласно $\gamma_l \sim q^{2l+1}$ ($l = 1, 2, 3, \dots$). Это характерное поведение названо авторами работы [35] аномальным рассеянием.

Кроме того, как это следует в частности из работы [21], отдельная мода плазмонных колебаний в системе дискретных рассеивателей может давать пространственно разделенные локализации неоднородной концентрации возбуждений ("hot spots"). Подобные эффекты наблюдаются, например, при рассеянии электромагнитного излучения на фракталах [29—31]. В подобных случаях имеет место локализация плазмонной моды. Наиболее важной чертой решения в этом случае является наличие в знаменателе резонансного фактора $(\epsilon_n - \epsilon(\omega))$ [1, 21]. При определенных частотах ω_n , таких что $(\epsilon_n - \epsilon(\omega)) = 0$, в системе возникает плазмонный резонанс, а в решении становится существенным лишь один член [1]:

$$\mathbf{E} \approx \mathbf{E}_0 + \mathbf{e}_n \frac{(\epsilon(\omega) - 1)}{(\epsilon_n - \epsilon(\omega))} \frac{\int_V \mathbf{e}_n \mathbf{E}_0 dV}{\int_V \mathbf{e}_n^2 dV}, \quad (15)$$

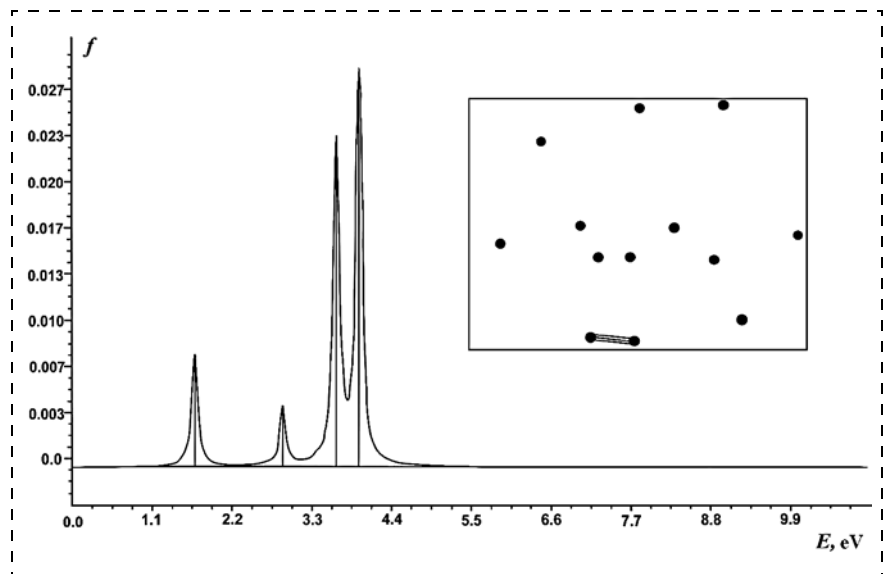


Рис. 6. Зависимость силы осциллятора f от энергии соответствующего перехода E для спектра синглетных возбуждений комплекса из атомов серебра. На вставке изображен расчетный кластер атомов серебра

Рис. 6. Dependence of the power of oscillator f on the energy of transition E for the spectrum of the singlet excitations of a complex from the atoms of silver. On the insert — the rated cluster of the atoms of silver

где ϵ_n — значение диэлектрической проницаемости, соответствующее собственной частоте ω_n ; $\epsilon(\omega)$ — значение диэлектрической проницаемости на частоте ω (см. [1]).

В этом случае возбуждается локализованный плазмон с частотой ω_n и с пространственной структурой, описываемой полем $\mathbf{e}_n$, которая не зависит от конкретного материала [1, 21]. Важной особенностью представленного подхода является то, что свойства плазмонов зависят только от формы частиц. Ширина резонанса, как функция частоты, зависит от мнимых частей ϵ_n и $\epsilon(\omega)$, и в случае наночастиц мнимая часть $\text{Im}(\epsilon_n) \sim (ka)^3$ становится очень малой.

Отметим, что в работе [36] проведены квантово-механические расчеты различных кластеров. Расчеты электронной структуры комплексов с учетом их релаксации к равновесному состоянию выполнены в рамках теории функционала плотности с гибридным функционалом. В работе [36] рассчитан энергетический спектр низколежащих возбужденных электронных состояний для линейных и октаэдрических комплексов. Показано, что понижение симметрии при образовании комплексов приводит к появлению в электронном спектре возбужденных состояний разрешенных синглетных переходов, запрещенных в оптических спектрах исходных компонент. Соответствующие спектры синглетных возбужденных состояний комплексов представляют собой серию узких пиков. При усложнении структуры упорядоченных кластеров увеличивается число резких резонансных пиков в

спектрах возбужденных состояний разрешенных синглетных переходов [36].

В настоящей работе был проведен аналогичный расчет относительно небольшого кластера (15 атомов), состоящего из атомов серебра, для зависимости силы осциллятора f от соответствующей энергии перехода E . Результаты расчета представлены на рис. 6. Из анализа числовых значений можно заметить, что приведенные величины достаточно хорошо согласуются со значениями максимумов для кластеров кобальта, приведенных на рис. 3, *a*. Однако линии спектров оказываются более широкими, чем это наблюдалось в экспериментах (см. рис. 3, 4). Отметим, что молекулярные орбитали в кластере формируются в результате взаимного проникновения или интерференции атомных орбиталей, поэтому спектр возбуждений представляет собой уровни коллектива атомов, составляющих кластер.

Обсуждение

Полученные путем химического синтеза мелко-дисперсные соединения различных веществ демонстрируют резкие, узкие пики в спектрах оптической плотности, связанные с возбуждением локализованных плазмонных мод. Число и высота пиков изменяются по ходу процесса химического синтеза, а также в зависимости от контролируемых параметров системы, что позволяет сделать вывод о наличии этапа, на котором формируется наибольшее число изолированных резонансных мод. Подобные свойства могут быть использованы при разработке покрытий, поглощающих и преобразующих электромагнитное излучение в широком спектральном диапазоне, в фотовольтаических устройствах. Это может быть полезным при создании солнечных элементов с высокой эффективностью, а также в слабоотражающих покрытиях и в селективных концентраторах излучения.

В работе [37] представлены результаты создания эффективного фотовольтаического элемента, использующего в качестве концентраторов электромагнитного излучения нанометровые металлические частицы никеля, нанесенные на поверхность устройства посредством электрохимического осаждения. В этой работе было продемонстрировано, что эффективность работы такого элемента выросла примерно в два раза по сравнению с аналогичным элементом без нанесения наночастиц. Настоящее исследование является продолжением этих разработок в направлении создания фотовольтаических элементов с улучшенными свойствами с использованием поглощающих и преобразующих свет покрытий. Разработке методов получения подобных покрытий и посвящена данная ра-

бота, т. е. синтезу веществ и соединений, которые обладают селективностью поглощения и рассеяния света определенных длин волн и содержат наночастицы из различных материалов. На практические успехи в этом направлении указывает, в частности, работа [36], где приводятся данные об использовании структурированных материалов в солнечных элементах.

Как это видно на рис. 3, *a, b*, появление резких, узких резонансов связано с расширением общего основания спектра зависимости оптической плотности от длины волны падающего излучения $D(\lambda)$. Графики $D(\lambda)$ на рис. 3, *a, b* демонстрируют закономерности процесса синтеза химических соединений на основе кобальта и серебра в последовательном порядке по времени формирования, которое на определенном этапе сопровождается появлением резонансов, тогда как графики для оксида графена на рис. 4, *d–f* представляют последовательность, связанную с исчезновением резонансов в связи с разбавлением раствора деионизованной водой. Отметим также наличие на верхних графиках на рис. 3, *a* и рис. 4, *f* достаточно плотной серии более мелких пиков, исчезающих при последующем разбавлении раствора с наночастицами оксида графена на нижнем графике рис. 4, *f*. Ввиду того, что простейший механический аналог подобной системы, состоящий из двух связанных упругими силами маятников с собственными частотами ω_1, ω_2 , представляет собой полосовой фильтр, то расширение общего основания спектров $D(\lambda)$ при появлении серии резонансных пиков можно рассматривать как расширение полосы частот, которую поглощает система с различной степенью эффективности. Исчезновение пиков различной величины приводит к сужению широкого основания аналогично изображенному на нижнем графике рис. 4, *f*. Сужение широкого основания происходит даже при наличии одного резкого резонанса по сравнению с наличием серии резонансов (ср. верхний график на рис. 3, *b* для частиц серебра и график на рис. 4, *a*). Отсутствие каких-либо резонансов на нижних графиках на рис. 3, *a* для соединений кобальта представлено более узкими зависимостями по сравнению с зависимостью для общего основания резонансов на верхнем графике на рис. 3, *a* при наличии серии узких, резких резонансов. Ширина спектра оптической плотности на полувысоте для наночастиц на основе соединений кобальта меняется во время синтеза в интервале 480...580 нм в начале процесса и до 340...850 нм в конце процесса. Для составов на основе наночастиц серебра те же характеристики дают изменения примерно 360...475 нм в начале процесса и до 340...500 нм в конце. Для составов на основе наночастиц оксида графена аналогичные показате-

ли приводят к изменениям в интервале примерно 150...380 нм в начале процесса синтеза и 150...650 нм в конце. Причем начало спектров в случае оксида графена экстраполировано ввиду того, что оно лежит за пределами чувствительности прибора. Отсюда можно сделать вывод, что наиболее широкими спектрами оптической плотности обладают спектры наночастиц на основе соединений кобальта и оксида графена (ширина спектра на полувысоте порядка 500 нм). Спектры указанных соединений лежат в разных диапазонах длин волн, к тому же спектры на основе наночастиц оксида графена имеют большее число резких пиков по сравнению со спектрами наночастиц для соединений кобальта. Наличие магнитной компоненты в соединениях кобальта, как правило, приводит к активному поглощению материалом в микрометровом диапазоне (см. ниже).

На основании рис. 1 и 2 можно сделать вывод, что разброс размеров элементов структуры в системе на основе соединений кобальта больше, чем для системы на основе серебра. С этим фактом может быть связано наличие более широкого спектрального основания в зависимостях $D(\lambda)$ для соединений кобальта (верхний график на рис. 3, *a*) по сравнению с основанием спектров для системы наночастиц серебра (верхний график на рис. 3, *b*).

Отметим также, что оценки, приведенные в работе [17], дают существенно меньший сдвиг частот по отношению к частоте, соответствующей максимуму поглощения ω_0 , $\Delta\omega = \omega - \omega_0$, за счет взаимодействия частиц со своим окружением, чем это следует из настоящих исследований. С точностью до слагаемых первого порядка малости нормированный сдвиг частоты согласно [17] дается выражением

$$\frac{\Delta\omega}{\gamma_0} = q_i \frac{3\pi\epsilon_0}{|\mathbf{d}_0|^2} \frac{1}{k^3} \text{Re}(\mathbf{d}_0^* \cdot \mathbf{E}_s), \quad (16)$$

где $\mathbf{E}_s$ — вторичное локальное поле; γ_0 — скорость атомной релаксации; $\mathbf{d}_0$ — дипольный момент, не зависящий от времени; ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума; q_i — внутренний квантовый выход. Сдвиг частот в системе, представляющей собой атомные диполи, за счет взаимодействия со своим окружением достаточно мал и находится в пределах ширины линии [17]. В нашем случае сдвиги частот существенно больше, поэтому важен более детальный учет резонансного взаимодействия частицы со своим окружением, особенно в условиях регулярного расположения частиц в структуре [18, 19], а также учет зависимости характеристик поглощения от размеров элементарных рассеивателей [1, 10]. Кроме того, в нашем случае

имеет место взаимодействие между резонансными колебаниями, которое приводит к существенному сдвигу положений резонансов.

Как отмечалось в работах [34, 38], дипольная модель для кластера из двух, трех и бесконечного числа частиц работает, пока расстояния между центрами частиц в три раза больше их радиуса. В случае меньших расстояний возбуждаются различные моды плазменных резонансов, имеющие различные законы дисперсии [1, 33, 34]. Эффективность взаимодействия этих мод с электромагнитным излучением выше, чем для обычного дипольного взаимодействия. Вклад в величину $\tilde{Q}_e$ от взаимодействия с окружением входит, в частности, параметр $\Omega_i^{(0)}$ и может быть обусловлен возбуждением резонансных мод различного типа, которые эффективно взаимодействуют с излучением [1, 33, 34]. Как отмечалось, в частности, в работе [39], мономеры ряда соединений являются высокоэффективными резонаторами, т. е. флуктуации локального поля в такой среде существенно выше, чем внешнее возбуждающее поле. Поэтому на основании анализа экспериментальных данных настоящего исследования можно сделать вывод, что химический синтез рассмотренных в данной работе соединений проходит через стадию, включающую образование подобных мономеров (типа олигомеров).

Слагаемые, входящие в параметры $\Omega_i^{(0)}$ и $\Gamma_i^{(0)}$ содержат информацию об упорядочении рассеивателей в различного рода правильные структуры как одномерные, так и двумерные [18, 19]. В связи с этим отметим следующее. МПЭГ ($\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{—H}$) представляет собой упорядоченную структуру с регулярно расположенными атомами кислорода, обладающими сильной ионностью. Эти поляризованные атомы кислорода способны притягивать атомы металла (серебра, кобальта и др.), так что расположение рассеивающих металлических центров в подобных структурах будет регулярным. Об этом, в частности, свидетельствует фотография структуры кластеров серебра на рис. 2, *a*.

Следует обратить внимание также на дополнительную возможность интенсивного поглощения электромагнитного излучения на одночастичных локальных состояниях носителей заряда, возникающих в окрестности частицы (диэлектрической, полупроводниковой) в квазиульмерных системах [40]. Синтез подобных гетерофазных систем в качестве сильно поглощающих материалов в достаточно широком диапазоне длин волн, который мог бы варьироваться в зависимости от вида используемых веществ, дает новые возможности при создании поглощающих и преобразующих свет покрытий [40].

Отметим, что аналогичные исследования проводились и с магнитными материалами в целях

получения слабоотражающих покрытий в микрометровом диапазоне длин волн [41, 42]. Специфика отклика конденсированной среды на внешнее воздействие излучения в значительной мере зависит как от свойств самой среды, так и от диапазона частот падающего излучения. Существенными свойствами композитной среды являются характерный размер составляющих ее частиц и специфика составляющих материалов. Так, непосредственное возбуждение узких плазмонных резонансов возможно в наноструктурированной среде с наличием металлов, обладающих малым затуханием (золото, серебро) в диапазоне частот порядка $10^{15} \dots 10^{16} \text{ с}^{-1}$. При этом существенную роль играет электрическая составляющая электромагнитного излучения. Возбуждение плазмонных колебаний в обычных кристаллических веществах макроскопических размеров возможно только при выполнении специальных условий, тогда как в наноструктурах плазмонный резонанс возникает при непосредственном воздействии излучения на наносистему [1]. Диапазон частот электромагнитного излучения, исследованный в работах [41, 42], имел порядок, типичный для электронного парамагнитного резонанса, т. е. $10^9 \dots 10^{10} \text{ с}^{-1}$, а размер частиц составлял микрометры. При этом существенную роль играла магнитная составляющая электромагнитного излучения. Таким образом, варьируя составляющие композитных материалов и их размеры, можно получать вещества, активные в различных диапазонах электромагнитного излучения, для решения различных практических задач, связанных с конвертированием падающего излучения в другие виды возбуждений.

В заключение укажем на аналогию между механической системой и исследуемой структурой, состоящей из нанокомпозитной среды, которая взаимодействует с падающим электромагнитным излучением. Система из двух связанных упругими силами механических маятников, находящихся во внешнем поле сил тяжести, обладает двумя собственными частотами, сдвинутыми относительно независимых частот изолированных маятников [43, 44]. Кроме того, при возбуждении двух мод ширина резонансной кривой становится более узкой $|\Delta\omega_n| = \gamma/2$ по сравнению с шириной линии, равной γ для изолированного осциллятора. Связанные осцилляторы являются "полосовым фильтром" — ослабляют влияние внешней силы частотой ω , лежащей вне интервала (ω_2, ω_1) , где ω_1, ω_2 — собственные частоты системы связанных осцилляторов [43, 44]. Основа преобразования энергии в механическом и электромагнитном случаях общая — взаимодействие осциллирующих систем. Таким образом, исследуемые покрытия, представляющие собой взаимодействующие кластерные

формирования со сложным спектром поглощения, могут служить для эффективного поглощения и преобразования энергии внешнего электромагнитного излучения.

Заключение

Проведены исследования оптических свойств синтезированных химическим путем мелкодисперсных соединений различных веществ, которые демонстрируют достаточно резкие, узкие пики в спектрах оптической плотности, связанные с возбуждением плазмонных мод, локализованных в малых областях. Число, высота и положение характерных пиков изменяются в ходе процесса химического синтеза, а также при изменении контролируемых параметров системы. Развита феноменологическая теория, основанная на обобщении совокупности имеющихся модельных представлений о процессе рассеяния света малыми частицами. Полученная обобщенная формула, описывающая поглощение света в среде, которая содержит рассеиватели малых размеров, учитывает вклады от различных эффектов, в том числе и от упорядоченных цепочек элементарных рассеивателей. Это позволяет объяснить наличие узких интенсивных пиков в спектрах поглощения. Проведен анализ результатов с точки зрения возбуждения локализованных плазмонных мод. Общий анализ полученных данных позволяет сделать вывод о том, что свойства композитной наноструктурированной среды существенным образом зависят от вида составляющих среду материалов, а также от характерных размеров отдельных составляющих системы. Структуры, состоящие из материалов, активных при возбуждении плазмонных резонансов, имеют характерные размеры порядка нанометров, тогда как материалы, поглощающие излучение в микроволновом диапазоне, содержат магнитные вещества и имеют характерные размеры порядка микрометров. Полученные результаты позволяют разрабатывать покрытия, активно взаимодействующие с электромагнитным излучением в различных диапазонах длин волн.

Фотографии структур сделаны на оборудовании ЦКП "Диагностика микро- и наноструктур" при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации.

Список литературы

1. Климов В. В. Наноплазмоника // М.: Физматлит. 2009. 480 с.
2. Wang Y., Plummer E. W., Kempa K. Foundations of plasmonics // *Advances in Physics*. 2011. Vol. 60, N. 5. P. 799–898.
3. Geddes C. D. (ed.). *Reviews in Plasmonics* — 2010. NY, Dordrecht, Heidelberg, London, Springer, 2012. 334 p.

4. **Le Ru E. C., Etchegoin P. G.** Principles of surface enhanced Raman spectroscopy and related plasmonic effects. Amsterdam: Elsevier, 2009. 663 p.
5. **Hill M. T., Marell M. J. H.** Surface emitting nanocavity lasers // *Advances in Optical Technologies*. 2011. Vol. 2011. P. ID 314952.
6. **Вайнштейн Ю. С., Горячев Д. Н., Кен О. С., Сресели О. М.** Поверхностные плазмон-поляритоны в композитной системе пористый кремний — золото // *ФТП*. 2015. Т. 49, Вып. 4. С. 453—458.
7. **Purcell E. M., Pennypacker C. R.** Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains // *Astrophys. J.* 1973. Vol. 186. P. 705—714.
8. **Draine B., Flatau P. J.** Discrete-dipole approximation for scattering calculations // *J. Opt. Soc. Am. A*. 1994. Vol. 11, N. 4. P. 1491—1499.
9. **Van de Hulst H. C.** Light scattering by small particles. NY: Dover Publications, Inc. 1981. 470 p.
10. **Bohren C. F., Huffman D. R.** Absorption and scattering of light by small particles. NY: Jon Wiley & Sons. 1998. 530 p.
11. **Kresin V.** Photoabsorption of small metal clusters: surface and volume modes // *Phys. Rev. B*. 1990. Vol. 42. P. 3247—3252.
12. **Zalevsky Z., Abdulhalim I.** Integrated nanophotonic devices. Amsterdam: Elsevier, 2010. 259 p.
13. **Савинский Н. Г., Васильев С. В., Наумов В. В., Соловьев М. Е., Швыркова Н. С.** Окисление терморасширенного графита // *Вестник ЯрГУ. Сер. Естественные и технические науки*. 2013. № 4. С. 73—79.
14. **Herricks T., Chen J., Xia Y.** Polyol synthesis of platinum nanoparticles: control of morphology with sodium nitrate // *Nano Letters*. 2004. Vol. 4, N. 12. P. 2367—2371.
15. **Mallick K., Witcom M. J., Scurrall M. S.** Self-assembly of silver nanoparticles in a polymer solvent: formation of a nano-chain through nanoscale soldering // *Mater. Chem. and Phys.* 2005. Vol. 90. P. 221—224.
16. **Quinten M.** Optical properties of nanoparticle systems. Mie and beyond. Weinheim, Germany: Wiley VCH Verlag, GmbH & Co. KGaA, 2011. 488 p.
17. **Novotny L., Hecht B.** Principles of Nano-Optics. Cambridge University Press, UK. 2006. 539 p.
18. **Zao L. L., Kelly K. L., Schatz G. C.** The extinction spectra of silver nanoparticle arrays: influence of array structure on plasmon resonance wavelength and width. 2003. Vol. 107. P. 7343—7350.
19. **Zou S., Janel N., Schatz G. C.** Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon lineshapes // *J. Chem. Phys.*, 2004. Vol. 120, N. 23. P. 10871—10875.
20. **Markel V. A., Pustovit V. N., Karpov S. V., Obuschenko A. V., Gerasimov V. S., Isaev I. L.** Electromagnetic density of states and absorption of radiation by aggregates of nanospheres with multipole interactions // *Phys. Rev. B*. 2004. Vol. 70. P. 054202.
21. **Shahbazyan T., Stockman M. I.** Plasmonics: Theory and Applications. Dordrecht, Heidelberg, NY, London: Springer, 2013. 631 p.
22. **Draine B. T., Goodman C. F.** Beyond Clausius-Mossotti: wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation // *Astrophys. J.* 1993. Vol. 405. P. 685—697.
23. **Bozhevolny S.** Plasmonic. Nanoguides and Circuits. Singapore: Pan Stanford Publishing. 2009. 441 p.
24. **Blakemore J. S.** Solid State Physics. Philadelphia—London—Toronto: W. B. Saunders Company, 1970. 480 p.
25. **Zou S., Schatz G. C.** Response to "Comments on "Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon line shapes" // *J. Chem. Phys.* 2005. Vol. 122. P. 097102.
26. **Meier M., Wokaun A.** Enhanced fields on large metal particles: dynamic depolarization // *Optics Letters*. 1983. Vol. 8, N. 11. P. 581—583.
27. **Markel V.** Divergence of dipole sums and the nature of non-Lorentzian exponentially narrow resonances in one-dimensional periodic arrays of nanosphere, URL: <http://arXiv:physics/05051186v1>.
28. **Ekardt W.** Wave-vector dispersion versus angular-momentum dispersion of collective modes in small metal particles // *Phys. Rev. B*. 1987. Vol. 36, N. 8. P. 4483—4486.
29. **Shalaev V. M., Botet R., Butenko A. V.** Localization of collective dipole excitations on fractals // *Phys. Rev. B*. 1993. Vol. 48, N. 9. P. 6662—6664.
30. **Tsai D. P., Kovacs J., Wang Z., Moskovits M., Shalaev V. M., Suh S., Botet R.** Photon scanning tunneling microscopy images of optical excitations of fractal metal colloid clusters // *Phys. Rev. Lett.* 1994. Vol. 72, N. 26. P. 4149—4152.
31. **Stockman M. I., Pandey L. N., George T. F.** Inhomogeneous localization of polar eigenmodes in fractals // *Phys. Rev. B*. 1996. Vol. 53, N. 5. P. 2183—2186.
32. **Born M., Wolf E.** Principles of optics. Oxford, London, Edinburgh, NY, Paris: Pergamon Press, 1968. 719 p.
33. **Klimov V. V., Guzatov D. V.** Strongly localized plasmon oscillations in a cluster of two metallic nanospheres and their influence on spontaneous emission of an atom // *Phys. Rev. B*. 2007. Vol. 75. P. 024303.
34. **Забков И. В., Климов В. В., Трешин И. В., Глазов О. А.** Плазмонные колебания в линейном кластере сферических наночастиц // *Квантовая электроника*. 2011. Т. 41, № 8. С. 742—747. URL: <http://www.quantum-electron.ru>.
35. **Tribelsky M. I., Luk'yanchuk B. S.** Anomalous Light Scattering by Small Particles // *Phys. Rev. Letters*. 2006. Vol. 97. P. 263902.
36. **Квятковский О. Е., Захарова И. Б., Зиминов В. М.** Ab initio расчеты супрамолекулярных комплексов фуллерена C₆₀ с CdTe и CdS // *ФТТ*. 2014. Т. 56. Вып. 6. P. 1240—1245.
37. **Ваганова Е. И., Мироненко А. А., Папорков В. А., Рудь Н. А., Рудый А. С., Проказников А. В.** Увеличение эффективности работы фотоэлектрических элементов наноструктурированием поверхности // *Микроэлектроника*. 2011. Т. 40. № 1. С. 36—44.
38. **Claro F.** Theory of resonant modes in particulate matter // *Phys. Rev. B*. 1984. Vol. 30, N. 9. P. 4989—4999.
39. **Markel' V. A., Muratov L. S., Shtockman M.** Optical properties of fractals: theory and numerical simulations // *Sov. Phys. JETP*. 1990. Vol. 71, N. 3. P. 455—464.
40. **Покутный С. И.** Поглощение и рассеяние света в квазинульмерных структурах. II. Поглощение и рассеяние света на одночастичных локальных состояниях заряда // *ФТТ*. 1997. Т. 39, № 4. С. 606—609.
41. **Yan L., Wang J., Ye Yu., Hao Z., Liu Q., Li F.** Broadband and thin microwave absorber of nickel-zinc ferrite/carbonyl iron composite // *Journal of Alloys and Compounds*. 2009. Vol. 487. P. 708—711.
42. **Guo J., Duan Y., Liu L., Chen L., Liu S.** Electromagnetic and microwave absorption properties of carbonyl-iron/Fe₉₁Si₉ composites in gigahertz range // *Journal of Electromagnetic Analysis and Applications*. 2011. Vol. 3. P. 140—146.
43. **Павленко Ю. Г.** Лекции по теоретической механике. М.: Физматлит. 2002. 392 с.
44. **Павленко Ю. Г.** Задачи по теоретической механике. М.: Физматлит. 2003. 536 с.

Selective Resonance Absorption of Electromagnetic Radiation by Nanostructured Systems

The authors of the present work investigate the optical properties of fine-dispersed compounds of different substances obtained by chemical synthesis, which demonstrate sharp narrow peaks in the optical density spectra connected with excitation of the plasmon modes localized within small regions. The number, amplitude and positions of the peaks change during the chemical synthesis and also depending on the controlled parameters of the system. The width of the common base of the optical density spectra for the synthetic systems, which consist of nanoparticles, depends on variation of the sizes of the component elements and interaction between the plasmon resonances. The position and width of the optical density spectra for the synthetic systems varies for different types of nanoparticles. The phenomenological theory based on generalization of the model concepts concerning light scattering by small particles was developed. Application of the observed effects in the microelectronic devices especially in photovoltaic cells was analyzed.

Keywords: composite materials, chemical synthesis, plasmon resonances, absorption spectra, Mie theory, periodical dependencies, photovoltaic cells

Introduction

Application of the nanosized metal particles in electro-optical tiny sensors, the devices based on the plasmon properties of nanoclusters, in chemical catalysts, for development of sensor devices, including for detection of various biological objects, encourage interest to the research of the methods and technologies for obtaining of such objects and to studying of their physical-chemical properties [1, 2]. Interaction of the electromagnetic radiation with small-sized particles, dependence of the properties of the scattered light on the external environment of a scattering particle provided to the researchers a powerful arsenal for detailed studying of the micro- and nano-objects, and laws of their interaction with the external environment [3, 4]. The interest to the research of the nanostructured surfaces is also connected with feasibility of development of tiny quantum generators (lasers) (for example, [5]). Another important aspect is that the silicon, being a base element of microelectronics, does not have a direct-zone energetic space, and a consequence of that is a low radiating ability, rather small section of light absorption in comparison with the direct-zone semiconductors and organic dyes. Very promising is a combination of the physical properties of the quantum dots with metal nanoparticles (nanocomposite systems) for excitation of the localized plasmon-polarization modes [6]. Various mechanisms can ensure strengthening of the optical properties of the "quantum dots — metal nanoparticles" structures. Besides, strengthening of the electric field occurs near the metal nanoparticles (a near field effect). Finally, a direct generation of the charge carriers in a semiconductor takes place due to distribution of the surface plasmon modes.

For the research of the isolated particles of a complex geometry the theoretical methods are used, for example, the method of discrete dipoles [7, 8]. Despite the fact that many aspects of the problem of light scat-

tering by the particles of small sizes have been studied [9, 10], the presence of the resonant phenomena, such as collective electronic fluctuations of electrons under the influence of light (for example, [11]) — plasmon excitations, open new prospects and require more studying, although there are many scientific and technological results included also in the educational literature (for example, [12]).

One of the important tasks of electronics is transformation of energy of the external electromagnetic radiation into the useful power of the energy sources, or into certain signals, which can be used in information technologies. Solution to those problems can ensure, in particular, interaction of light with the linear and other clusters of nanoparticles. This will allow us to integrate the modern silicon electronics with highly effective plasmon devices. Thus, the physical aspects investigated in the present work are important for understanding of the basic moments related to conversion of the electromagnetic waves into the channels, with the resonant effects of interaction of light with the substance. All this is connected with the development of the new electronic devices based on nanotechnologies [1, 2] and combining the integrated properties of the effective plasmon devices with a silicon element base.

The above enumerated aspects determine carrying out of a detailed research of the synthesis of the fine-dispersed environments and studying of their interaction with the electromagnetic radiation in the bands, where an excitation of the plasmon resonances is possible. The work is aimed at the use of the chemically synthesized fine-dispersed systems with presence of non-uniformly scaled objects for increasing of the efficiency of interaction of the external electromagnetic radiation in the area of the plasmon resonances [1, 2].

There are basic methods of obtaining of metal nanoparticles, which can conditionally be divided into physical and chemical. The first group includes evapo-

ration of metal with the subsequent condensation on various substrates, mechanical grinding of big particles in mills, ultrasonic processing in the colloidal solutions, and a number of other methods. The second group of the technologies incorporates chemical, colloidal methods [1, 2], based on a chemical reduction of ions of metals or electrochemical dissolution of a metal electrode in the solutions encouraging formation of metal nanoclusters or aggregates of particles, electrochemical sedimentation of a substance in a nanoporous matrix and its etch removal. The main efforts in the chemical synthesis of the nanoclusters boil down to stabilization of the nanoaggregates, formed in the reaction with the use of various organic stabilizers. In [3] the methods are described for reception of nanoparticles of cobalt from cobalt chloride in the presence of stabilizers, at that, nanoparticles are formed with a spread of the characteristic sizes within 2...11 nm. The form of the particles to a great degree depends on the synthesis parameters.

The aim of the present research is development of the absorbing coatings with high selectivity and transforming radiation into the plasmon modes of various wavelengths for application in the photovoltaic devices, in particular.

Experimental part

For synthesis of the substances with selective absorbing properties the following chemical reagents were used: MPEG — methoxy polyethyleneglycol — 550 from Fluke Co., cobalt nitrate hexahydrate of HCh qualification, silver nitrate of OSCh qualification, deionized water 18 MΩ/cm. Synthesis of the graphene oxide and its cleaning were done by the method [13]. All the reagents were used without additional cleaning. Single-channel UV SF-56 spectrophotometer from LOMO Co. was used for research of the absorption spectra in the ultraviolet and visible ranges.

Synthesis of a nanostructured cobalt compound was done in MPEG solution and compound of cobalt nitrate $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$, and also SDBS — sodium dodecyl benzene sulfonate. Then it was subjected to radiation during 1...15 min. For this purpose PANASONIC NM-GS597M microwave oven was used with frequency of 2,54 GHz. The power of the oven was controlled by an inverter within the range of 1 kW...0,2 kW. For temperature measurement TESTO-845 contactless thermometers were used. For safety of operation, the TESTO optical input for thermometers in the microwave oven was implemented in the form of a beyond-cutoff waveguide with the attenuation coefficient of 60 dB.

This synthesis of the nanostructured compound of cobalt acquired the name of "microwave polyol". During reaction of reduction by means of polyol the metal particles absorb the microwave energy, which leads to a fast local warming of the solution around a particle, known as surface polarization. Ethylene glycol is well-

known as a synthesis environment and is widely used for preparatory obtaining of the nanosized materials [14]. Ethylene glycol is widely used for synthesis of nanoparticles of metals due to its unique physical properties: high constant of dielectric permeability and, as a consequence, solubility of many ionic compounds in it, in particular, of the salts of metals, high boiling temperature (195 °C at the atmospheric pressure), which allows a synthesis with the inorganic salts at rather high temperatures. Thus, ethylene glycol is a strong reducing agent.

One of the versions of polyol synthesis is the use of polyethylene glycoles (PEG) of various polymerizations, at that low-molecular PEG-200, PEG-400 and PEG-600 are liquids, while higher degrees of polymerization are solid substances. One of the strongest reducing agents among the polyols is the monomethyl aether of polyethylene glycole — MPEG, which was used in the work for synthesis of the nanometal clusters of cobalt [14] and silver [15]. The chemical environment of ion of a metal at the initial stage of reaction of reduction influences the size and dispersion of the sizes of the nanoclusters of metals. In the polyol process MPEG ($\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{—H}$) acts as both a reducing agent and as a soft matrix for the metal particles-nanoclusters. Under the influence of UV irradiation it generates free radicals, which restore ions of metals.

Reduction of the salts of metals into the metal nanopowders in a polyol environment, including with the use of a microwave radiation, is well-known, i.e. application of a microwave heating for the synthesis of metal nanoparticles is a well-developed method. Thus, it is necessary to single out certain features of the process. Energy of a photon of a microwave range is about 10^3 J/mol, which is 25—40 times less than the energy of rupture of a molecular bond. Energy of the microwaves activates the oscillatory modes of groups of bonds in a molecule, which can be dubbed "antenna groups". There is no other influence of the microwave energy on the mechanism of the course of a chemical reaction, except the thermal dissipation of the microwave energy.

Samples of the multilayered grapheme oxide were synthesized by the modified method of Hammers and identified by X-ray phase diffraction, element analysis with the use of the energy-dispersion method, spectroscopy of combinational dispersion, and also IR-Fourier spectroscopy: The samples were used in the form of powders, tablets and films. The spectra of combinational scattering of the graphene oxide were recorded with the use of EnSpector-R532 spectrometer within the range of $140\text{...}6030\text{ cm}^{-1}$, and resolution of 6 cm^{-1} , the number of scans were 20...300. The X-ray-phase analysis was done with the use of ARL XTRA-Termo-Techno powder diffractometer. The results of the analysis, and also the pictures received by means of an electronic microscope, testify to formation of a graphene oxide compound.

The method for reception of nanoclusters of metals in MPEG solution is simple enough. At first a portion of silver nitrate, weighed with the accuracy of 10^{-4} g, was dissolved in a minimum quantity of deionized water, then, a necessary quantity of MPEG was added to the solution; Concentration of the test was 60 mM/l and was determined photometrically. Liquid cuvette with thickness of 1 cm with a magnetic mixer filled with the investigated solution was fixed in the cuvette thermostating section of SF-56 spectrophotometer from Lomo-Spektr Company. The prepared reactionary solution was used immediately, because at a room temperature the reaction proceeds rather quickly. The spectra of the absorption for the solution were recorded with certain time intervals. If cobalt nitrate is used, a preliminary dissolution in water is not required (crystallized water is enough), dissolution occurs directly in MPEG. Then it was exposed to 1 kW-power microwave radiation within 1–15 min. After each exposure the absorption spectra were filmed.

Each stage of the influence of the microwave radiation on the system was accompanied by recording of the absorption spectra on SF-56 standard installation, radiation in which was generated by lamps and scanned into the spectrum by a diffraction lattice. The typical final result of a synthesis influenced by a microwave radiation is presented in fig. 1. As is visible, there are structural formations of various scales from 10...20 nm up to 1 μ m, at that, (fig. 1) inside the objects with the size of about 100 nm there are many close-packed and covered objects with the sizes of 10...20 nm. Fig. 1, *b*–1, *d* presents a kind of the formed structure of various scales. As a whole, the structure looks like a disordered fractal.

Nanoclusters of silver are formed by a similar technique, that is, photolysis of a solution containing ions of silver and MPEG in the presence of water. During a consecutive chain of reactions MPEG molecules turn into a powerful reduction reagent, capable to reduce the ions of silver up to the metal state. Such atoms act as centers of nucleation and growth of the metal clusters due to reduction of the ions remaining in the solution. This stage has an autocatalytic character. The reduction potential — an ion of metal/atom of metal and an ion of metal/cluster of metal — becomes more negative than the ion of a metal/massive metal. The result is formation of a cluster metal structure. Photos of the silver nanoclusters are presented in fig. 2.

The spectra of absorption of cobalt nitrate after each stage of formation of a material due to exposure by a microwave radiation are presented in fig. 3, *a*. The optical density D characterizing the absorption of the incident radiation, has obviously expressed maxima, which under the microwave radiation are modified into a series of narrow, sharp resonances. At the initial stage the absorption spectrum has two characteristic maxima in the areas of 300 and 536 nm, which is typical for the compound of cobalt nitrate $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$. After processing

of a sample by the microwave radiation within several minutes broadening of the peak occurs with the beginning of growth in the range of 450 nm, which comes to an end in the range of 650 nm (fig. 3, *a*, diagrams 1–8). The series of diagrams 1–8 is located rather densely, so some of them are practically indiscernible and are not marked (fig. 3, *a*). During processing of a sample by microwave radiation within approximately 15 min, radical changes take place in the absorption spectra, on which there are several narrow sharp maxima, at that, the basic wide base maximum broadens practically from 300 up to 900 nm (fig. 3, *a*, diagram 9). The spectrometer device has a top limit of the optical density, therefore, the optical density is cut off at $D = 7$ (fig. 3).

During the experiment measurements were done of the optical density of the fine-dispersed environments on the basis of the synthesized compounds, which was connected with the absorbing and disseminating properties of the environment and defined under the formula

$$D(\lambda) = \lg(1/T(\lambda)),$$

where $T(\lambda)$ — is transmission coefficient; λ — wavelength of the incident radiation. Optical density $D(\lambda)$ is the sum total of various contributions (for example, [16]):

$$D(\lambda) = \sum_k \sigma^{ext}(\lambda, R_k) \frac{n_k(R_k)}{V} \lg(e)d, \quad (1)$$

where n_k/V is concentration of the particles with the characteristic size R_k ; d — thickness of a sample; σ^{ext} — section of extinction.

Typical spectra of absorption for the cluster structures on the basis of silver with a sharp maximum in the range of 423 nm are presented in fig. 3, *b*, 4, *a* (compare them with the data from [2]). Let us point out, that the structure on the basis of the silver clusters as a whole consists of spherical formations, rather close by their sizes (see fig. 2, *a*), while the structure on the basis of cobalt represents clusters, non-uniform by their structure and arrangement (see fig. 1, *a*). The dynamics of formation of the investigated cluster structures is characterized by the presence of a number of strongly pronounced stages.

After a rather big time interval the spectrum of a colloidal silver solution acquires one sharp resonant peak (see fig. 4, *a*). Thus, the dynamics of formation of the colloidal solutions of some compounds passes the stages, which are characterized by a gradual formation of the structures, active in the corresponding part of the electromagnetic spectrum, their interaction with the environment, and formation of rather homogeneous objects.

In the compounds of cobalt nitrate type the finally formed nanostructured environment is characterized by several sharp maxima, while the environment on the basis of silver nanospheres gives one sharp peak.

For analysis and interpretation of the undertaken research it is necessary to note several discovered regularities. As one can see in fig. 1 and 2, the generated structure is rather complex, so that the objects of a smaller size form structures with those of a bigger size. View of the corresponding spectra of absorption (fig. 3) testifies to the fact that several modes of various frequency, and extremely small width, located on a wider spectral line (approximately from 300 up to 900 nm — fig. 3, *a*) are simultaneously active. Sharp maxima of the absorption peaks respond to $\lambda_1 \approx 349$ nm ($\omega_1 \approx 5,38 \cdot 10^{15}$ s⁻¹, $E \approx 3,5$ eV), $\lambda_2 \approx 425$ nm ($\omega_2 \approx 4,43 \cdot 10^{15}$ s⁻¹, $E \approx 2,9$ eV), $\lambda_3 \approx 540$ nm ($\omega_3 \approx 3,48 \cdot 10^{15}$ s⁻¹, $E \approx 2,3$ eV), $\lambda_4 \approx 700$ nm ($\omega_4 \approx 2,69 \cdot 10^{15}$ s⁻¹, $E \approx 1,8$ eV) where ω and E — are frequency and energy of radiation. This testifies to the presence of the plasmon resonances in the investigated system, in the presented interval of the wavelengths. Fig. 4, *b–d* testifies that after agitation of the colloidal solution of the graphene oxide, the junction of the solid particles of the solution each time occurs a little bit differently, which is reflected in the varied arrangement of the sharp peaks in the absorption spectra for different agitations. Dilution of the solution of the graphene oxide leads to a gradual reduction of the number of sharp peaks and their sizes up to their complete disappearance (see fig. 4, *d–f*).

Theoretical analysis of the results

Leaning on the experimental laws, it is natural to base the considered model on the dependence of the parameters, which determine absorption of the radiation energy, i.e., the arrangement of the peaks of absorption and their width on the sizes of the scatterers and their interaction among themselves. The complexity of interpretation of the results consists in the fact that the traditional classical approaches based on models of Drude—Lorents—Sommerfeld do not take into account the dimensional effects, determined by the cross-section sizes of the particles, forming the system, and interactions between those elementary scatterers (for example, [16, 17]). The modern methods, developed deeply enough in literature, are the consecutive steps in a more detailed description of the complex systems representing the ensembles of the interacting scatterers with the nanometer cross-section sizes [7; 18–21].

One of the basic characteristics of the dissipative properties of the environment is the polarization factor $\alpha(\omega)$, depending on the frequency of the incident radiation. The problem of finding $\alpha(\omega)$ for the infinite lattice of the polarizable discrete dipoles is solved in [22]. The expression depends on the parameter, describing the distance between the scattering centers, and also on the polarization of the incident radiation. The expression for the polarization factor is characterized by a shift of the characteristic frequencies, and also influ-

ence of the environment on the dissipative properties. Let us point out, that already for the classical oscillators, interacting by means of the elastic forces, there is a solution with a shift of the resonant frequency depending on the intensity of interaction with the environment [23]. The shift of the resonant frequency is also characteristic for the model of the average field based on Clausius—Mossotti correlation [24]. The general idea of the approach to estimation of the results of the present work leans on the aspects stated, in particular, in [19], where an approach is given to calculation of the polarization of a separate particle and extinction section, depending on the properties of the environment of a scattering particle. The result testifies to the fact that a shift of frequency of the absorption maximum takes place, as well as a change of the width of the spectrum. A more detailed analysis of the correlations is presented in [25], where an analytical expression is given for the polarization of the environment with account of interaction of the scattering dissipation of a particle with the environment. This expression leads to an asymmetrical form of the line for calculation of its characteristics. The final result for description of the dissipative properties of an ensemble of particles is obtained by summation for all the particles, scattering the energy of the incident radiation.

In the standard approach proposed by Mie, the Maxwell equations are solved inside and outside of the small scattering particle and are sewed on the border of the solution for the field inside and outside of the sphere. In this approach the shift of the resonant frequency and also the attenuation characteristics, that is, an imaginary additive to the polarizing properties, can be described.

According to Mie theory, the cross-section of scattering of radiation on a metal sphere can be presented in the following form [10]:

$$\sigma^{sca} = \frac{2\pi c^2}{m_2 \omega^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \{ |a_n(x, mx, m)|^2 + |b_n(x, mx, m)|^2 \}, \quad (2)$$

where c is the speed of light;

$$a_n(x, mx, m) = \frac{\psi'_n(mx)\psi_n(x) - m\psi'_n(x)\psi_n(mx)}{\psi'_n(mx)\zeta_n(x) - m\zeta'_n(x)\psi_n(mx)}; \quad (3)$$

$$b_n(x, mx, m) = \frac{m\psi'_n(mx)\psi_n(x) - \psi'_n(mx)\psi_n(x)}{m\psi'_n(mx)\zeta_n(x) - \zeta'_n(x)\psi_n(mx)}; \quad (4)$$

$$\psi_n(z) = z j_n(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} J_{n+1/2}(z); \quad (5)$$

$$\zeta_n(z) = z h_n^{(1)}(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} H_{n+1/2}^{(1)}(z); \quad (6)$$

$\psi_n(z)$, $\zeta_n(z)$ are functions of Riccati—Bessel and Riccati—Hankel; $j_n(z)$, $h_n^{(1)}(z)$ — spherical functions of Bessel and Hankel; $J_{n+1/2}(z)$, $H_{n+1/2}^{(1)}(z)$ — functions of Bessel and Hankel of a half-integral order; $x = 2\pi r/\lambda = 2\pi r m_2/\lambda_{vacuum}$; $m = m_1/m_2$, m_1 , m_2 — indicators of the refraction of the sphere and environment, accordingly; r — size of the scattering particle.

Within the limit of small parameter $x = kr$ (where k is the wave vector) from the presented formulas we get [10]:

$$a_1 = isx^3(1 + tx^2 - isx^3), \quad b_1 = isux^5, \quad (7)$$

where

$$s = \frac{2}{3} \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}; \quad t = \frac{3}{5} \frac{m^2 - 2}{m^2 + 2}; \quad u = \frac{1}{30} (m^2 + 2). \quad (8)$$

Being limited by the first summand in (7), from the formula (2) we receive the known expression for the section of light scattering on a small sphere [10]:

$$\sigma^{sca} = \frac{8\pi r^2}{3} \left| \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right|^2 x^4, \quad (9)$$

where it is assumed that: $m_1 = n$, $m_2 = 1$.

In another widely presented approach (in the electrostatic limit) the equation of Clausius-Mossotti (for the visible spectrum with account of the frequency dispersion — the equation of Lorentts-Lorents) is used together with the model of fading oscillators in the periodic external electromagnetic field. This model explains easily a shift of the resonant frequency during interaction of a local oscillator with the environment. In [26] the two above approaches are compared. Polarizability of the scattering spherical particle with account of the radiation damping and dynamic depolarization is expressed by the formula [26]:

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 - k^2 \alpha_0 / r - 2/3 i k^3 \alpha_0}, \quad (10)$$

where α_0 is quasi-static polarizability defined by the correlation [25]: $\alpha_0 = (\varepsilon - 1)r^3/(\varepsilon + 2)$, r — radius of a spherical particle, k — module of the wave vector connected with the frequency by correlation $k = \omega/c$, ε — dielectric permeability of a particle. For a disperse dependence $\varepsilon(\omega)$ the standard model of Drude is used, so, $\varepsilon(\omega) = 1 - \omega_b/\omega(\omega + i\gamma_d)$. After that the expression (10) with the use of the above correlations is transformed into the following form [25]:

$$\alpha = \frac{-1/3 \omega_b^2 r^3}{\omega^2 \left(1 + \frac{\omega_b^2 r^2}{3c^2} \right) - \frac{\omega_b^2}{3} + i\omega \left(\gamma_d + \frac{2\omega_b \omega^2 r^3}{9c^3} \right)}, \quad (11)$$

where γ_d is the dissipation factor; ω_b — frequency of the volume plasmon.

For reception of the initial formula for estimation of the observable effect, the fact is used, that interaction of a particle with the environment, that is, with the other particles, which are in its affinity, results for polarization of the environment in:

$$P = E_0/(\alpha^{-1} - S),$$

where E_0 is intensity of the electric component of an electromagnetic field of the incident wave; S — the sum with account of the dipole interaction between the neighboring particles [19].

In that specific case, interaction among themselves of the regularly located scatterers, contributes to the shift of the resonant frequencies and exerts influence on the dissipative properties of the system.

The extinction cross-section can be presented in the following form [19]

$$\sigma^{ext} = \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(\mathbf{E}_{inc,j}^* \cdot \mathbf{P}_j), \quad (12)$$

where k is the module of the wave vector of radiation; E_0 is a peak value of the intensity of electric field of the incident wave; $\mathbf{E}_{inc,j}^*$ is the intensity of the electric field of the incident wave; $\mathbf{P}_j$ is the vector of polarization of the environment for j light scattering particle; N is the total number of the scattering particles, the summation is done by the scattering particles numbered with index j . For identical particles we will receive extinction cross-section in the following form [19]:

$$\sigma^{ext} = 4\pi N k \text{Im}(P/E_0). \quad (13)$$

The extinction cross-section per one spherical frequency σ_e (see, for example, [27]) is expressed by correlation: $\sigma_e = \sigma^{ext}/N$. Since P is proportional to E_0 , then σ_e is proportional to polarizability: $P = \alpha E_0/(1 - \alpha S)$.

Practically all the approaches presented in literature lead to a similar form of a spectrum line with different arrangement of the maxima and width of the lines. The line form is asymmetrical, which is visible in fig. 3, 4. Using this fact, we come to a modeling expression for the value, describing the interaction of the environment with the electromagnetic radiation. Let us introduce value equal to: $\tilde{Q}_e = \sigma_e/(4\pi k r^3)$. The expression for the dimensionless value of the efficiency of light scattering $\tilde{Q}_e$ can be transformed to the model kind, containing the dimensionless values:

$$\tilde{Q}_e = \sum_i \frac{[\tilde{\omega}(\gamma^{(0)} + c\tilde{\omega}^2) + \Gamma_i^{(0)}]}{[\tilde{\omega}^2(1+a) - 1/3 - \Omega_i^{(0)2}] + [\tilde{\omega}(\gamma^0 + c\tilde{\omega}^2) + \Gamma_i^{(0)2}]}, \quad (14)$$

where summation is done by the parameters, corresponding to the maxima of absorption, $\tilde{\omega} = \omega/\omega_b$ — is the dimensionless frequency of the incident electromagnetic radiation, $\gamma^{(0)} = \gamma/\omega_b$ — the dimensionless parameter describing attenuation; $\Omega_i^{(0)}$ — dimensionless parameter including a real part of interaction of the allocated i -particle with the environment, which tests the resonant absorption on the frequency of radiation, $\Gamma_i^{(0)}$ — dimensionless parameter including an imaginary part of the interaction of the allocated i -particle with its environment, testing the resonant absorption; a, c — dimensionless parameters. Expression (14) agrees with the expression from [25]. We should point out, that parameters $\Omega_i^{(0)}, \Gamma_i^{(0)}$, contain, in particular, accordingly, $\text{Re}(S)$ and $\text{Im}(S)$, describing the total contributions of the closely situated elementary scatterers, which can be positive and negative (for example, [8, 18, 19]). This expression determines the position and form of the observable maxima in spectra in fig. 3, 4. We should point out, that similar rather convenient units of the plasma frequency ω_b are also used for measurement of arguments in [28].

The approaches based on the quantum-mechanical schemes demand a finding of the own values of matrixes for the operator of the dipole interaction between the scatterers [29–31]. Then the form of a line of absorption, distribution of the intensity of the electromagnetic field by distribution of the scatterers can be calculated. The weight factor, defining the form of the lines of the spectra, in this case has a Lorents character. Similar approaches provide an opportunity to describe the localized plasmons, in particular, in the fractal environment [29–31].

It is possible to draw a conclusion, that for the given processes there is in general an asymmetrical form of the characteristic spectra lines (fig. 3, 4). Shift of the maxima and the width of each line are determined by the interaction with the environment. Plurality of peaks is defined by isolation of the agglomerations of the elementary scatterers, localized in different places.

The results of the calculations done in accordance with formula (14) are presented in fig. 5. Maxima of $\tilde{Q}_e$ coincide with the maxima of the spectrum (fig. 2). The spectrum (fig. 5) reflects the basic regularities of the received dependence (fig. 3, a). The common basis of the spectrum is not a Lorents curve, similar to the presented dependence on the experimental curve (fig. 3, a). Parameters $\Omega_i^{(0)}$, describing the positions of the maxima of the dependence, are included into expression (14) [32]. They agree with the values having a physical sense, embracing the spectrum of the values from units up to several tens of units (in units $\omega_b \sim 10^{15} \text{ s}^{-1}$). $\Gamma_i^{(0)}$, connected with the dissipation energy, is by two or three orders less than $\Omega_i^{(0)}$ for the narrow peaks and several times less, than the value for a wide peak, which is the basis for all the dependence. For a wide peak there is

"a weight multiplier", because the peaks are connected with a number of particles with the corresponding sizes and forms, and the common basis is determined by the interaction of light with a sample.

Value of $\omega_b \sim 10^{15} \text{ s}^{-1}$ used in the work for numerical estimations for the characteristic frequency of the collective plasma fluctuations is based on several reasons and differs from the usually applied order of this value for metals $\omega_b \sim 2\pi \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$. Firstly, the form of the particles may differ from the spherical one, for which the above formulas are fair. In case of an extended form of a particle the correlation [10] takes place:

$$\omega_s^2 = L\omega_b^2/[\varepsilon_m - L(\varepsilon_m - 1)],$$

where L — is the length of the extended particle; $0 < L < 1$, ε_m — dielectric penetrability of the environment, that is, the resonance frequency will be lower, than the frequency of the volume plasmon ($\omega_b \sim 2\pi \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$), the dependency of the resonance frequencies on the forms of the particles, in particular [1, 2]. Secondly, various modes of plasmon fluctuations may be excited for the sum total of the particles, having various laws of dispersion and resonant frequencies [33, 34]. The resonant frequencies for various modes are approximately 10 times less than ω_b [34].

The width of the peaks (fig. 5) has somewhat bigger values, than from the experiment (see fig. 3, 4). The reason for occurrence of the narrow, resonant peaks can be the localized, plasmon modes [1]. As it is mentioned in [1], there is a direct analogy between the spectra of the localized plasmons and the spectra of the atoms and molecules. Solution to the task of the energy spectrum of the charged spherical cluster leads to the expressions for the basic characteristics (levels of energy, wave functions), similar to those for the atoms and molecules [1]. In [35] an account was done of the usually rejected members in Mie theory of dispersion of the electromagnetic radiation by small spherical particles, and it was demonstrated, that the summands can determine extremely narrow peaks depending on $q = an_m\omega/c$, where a — is characteristic size of a particle, while the characteristic width of the peaks is defined according to $\gamma_l \sim q^{2l+1}$ ($l = 1, 2, 3, \dots$). This characteristic behavior was dubbed by the authors [35] as an abnormal scattering.

Besides, as it follows, in particular, from [21], a separate mode of the plasmon fluctuations in the system of the discrete scatterers can ensure spatially divided localizations of the non-uniform concentration of excitations ("hot spots"). Similar effects are observed, for example, during scattering of the electromagnetic radiation on the fractals [29–31]. In such cases localization of the plasmon modes takes place. The most important feature of the solution is the presence of a resonant fac-

tor in the denominator ($\varepsilon_n - \varepsilon(\omega)$) [1, 21]. At certain frequencies of ω_n , such as $(\varepsilon_n - \varepsilon(\omega)) = 0$ a plasmon resonance appears in the system, and in the solution only one member is essential [1]:

$$\mathbf{E} \approx \mathbf{E}_0 + \mathbf{e}_n \frac{(\varepsilon(\omega) - 1)}{(\varepsilon_n - \varepsilon(\omega))} \frac{\int_V \mathbf{e}_n \mathbf{E}_0 dV}{\int_V \mathbf{e}_n^2 dV}, \quad (15)$$

where ε_n is dielectric permeability, corresponding to the own frequency of ω_n , while $\varepsilon(\omega)$ is the dielectric permeability on the frequency of ω (see [1]).

In this case the localized plasmon with frequency ω_n is excited also with the spatial structure described by field $\mathbf{e}_n$ which does not depend on a concrete material [1, 21]. An important feature of the approach is that the properties of the plasmons depend only on the form of the particles. The width of the resonance as a frequency function depends on the imaginary parts of ε_n and $\varepsilon(\omega)$ and in a case of the nanoparticles the imaginary part $\text{Im}(\varepsilon_n) \sim (ka)^3$ is very small.

In [36] the quantum-mechanical calculations of various clusters were carried out. Calculations of the electronic structures of the complexes taking into account their relaxation to the equilibrium state were done within the framework of the functional density theory with a hybrid functional. The energy spectrum of the low-lying excited electronic states for the linear and octahedral complexes was calculated. Lowering of the symmetry during formation of the complexes leads to appearance in the electronic spectrum of the excited states of the allowed singlet transitions, forbidden in the optical spectra of the initial components. The corresponding spectra of the singlet excited states of the complexes represent a series of narrow peaks. During a complication of the structure of the ordered clusters the number of the sharp resonant peaks in the spectra of the excited states of the allowed singlet transitions increases [36].

In the present work a similar calculation was done of a relatively small cluster (15 atoms) consisting of the atoms of silver, for the dependence of the oscillator force f on the transition energy (E). The results of the calculation are presented in fig. 6. From the analysis of the numerical values one can see, that the resulted values agree well enough with the maxima values of the cobalt clusters presented in fig. 3, *a*. However, the lines of the spectra appear to be wider than they were observed in the experiments (see fig. 3, 4). We should point out, that the molecular orbitals in a cluster are formed as a result of a mutual penetration or an interference of the atomic orbitals, therefore, the spectrum of the excitations represents the levels of a collective of atoms forming a cluster.

Discussion

The fine-dispersed compounds received by a chemical synthesis show sharp, narrow peaks in the spectra of the optical density, connected with the excitation of the localized plasmon modes. The number and height of the peaks change in the course of the chemical synthesis, and also depending on the controllable parameters of the system, which allows us to draw a conclusion on availability of a stage, at which the greatest number of the isolated resonant modes is formed. Such properties can be used for development of the coatings, which absorb and transform the electromagnetic radiation in a wide spectral range in the photovoltaic devices. This may be useful for development of high-efficiency solar elements, and also in the poorly reflecting coatings and in the selective concentrators of radiation.

In [37] the results are presented of development of a photovoltaic element using as concentrators of the electromagnetic radiation the nanometer metal particles of nickel, deposited on the surface of the devices by means of electrochemical deposition. This demonstrates that the efficiency of such an element has roughly doubled in comparison with a similar element without a deposition of nanoparticles. The research is a continuation of those works for development of the photovoltaic elements with improved properties and use of the light absorbing and transforming coatings. The given work is devoted to development of such coatings, that is, synthesis of the substances and compounds, which possess selectivity of absorption and dispersion of light of certain wavelengths and contain nanoparticles from various materials. The data, presented in [36] about the use of the structured materials in the solar elements, testify to the practical success in this direction.

As is visible in fig. 3, *a, b*, appearance of sharp, narrow resonances is connected with the expansion of the common basis of the spectrum of dependence of the optical density on the wavelength of the incident radiation $D(\lambda)$. Diagrams $D(\lambda)$ in fig. 3, *a, b* demonstrate the laws of synthesis of the chemical compounds on the basis of cobalt and silver in a consecutive order by the time of formation, which at a certain stage is accompanied by occurrence of the resonances, whereas the diagrams for the graphene oxide in fig. 4, *d–f* represent a sequence connected with disappearance of the resonances due to dilution of a solution with the deionized water. Let us note the presence on the top diagrams in fig. 3, *a* and fig. 4, *f* of a rather dense series of smaller peaks, which disappear during a subsequent dilution of the solution with the nanoparticles of the graphene oxide on the bottom diagram of fig. 4, *f*. Due to the fact that an elementary mechanical analogue of the system consisting of two pendulums connected by the elastic forces with the own frequencies of ω_1 , ω_2 represents a

strip filter, the expansion of the common basis of the spectra $D(\lambda)$ during appearance of a series of the resonant peaks can be considered as an expansion of the frequency band, which is absorbed by the system with a varied degree of efficiency. Disappearance of the peaks of various values leads to a narrowing of the wide basis similarly to the one presented in the bottom diagram of fig. 4, *f*. Such a narrowing occurs even in the presence of one sharp resonance in comparison with the availability of a series of the resonances (compare the top diagram in fig. 3, *b* for the silver particles and the diagram in fig. 4, *a*).

Absence of any resonances in the bottom diagrams in fig. 3, *a* for cobalt compounds is presented by the dependences narrower in comparison with the dependence for the common basis of the resonances on the top diagram in fig. 3, *a* in the presence of a series of the narrow, sharp resonances. The width of the spectrum of the optical density at the semiheight for the nanoparticles on the basis of the cobalt compounds varies during the synthesis within the range of 480...580 nm in the beginning and up to 340...850 nm in the end. For the compositions on the basis of the nanoparticles of silver the same characteristics demonstrate changes of approximately 360...475 nm in the beginning and up to 340...500 nm in the end. For the compositions on the basis of the nanoparticles of the graphene oxide similar indicators lead to the changes within an interval of approximately 150...380 nm in the beginning of the synthesis and 150...650 nm in the end. At that, the beginning of the spectra in case of the graphene oxide is extrapolated, because it lies in the region beyond the sensitivity of the device. It is possible to draw a conclusion that the widest spectra of the optical density are the spectra of the nanoparticles on the basis of the compounds of cobalt and graphene oxide (the width of the spectrum at a semiheight is about 500 nm). The spectra of the above compounds lie in different ranges of the wavelengths, besides, the spectra on the basis of the nanoparticles of graphene oxide have a bigger quantity of sharp peaks in comparison with the spectra of the nanoparticles for the cobalt compounds. Availability of a magnetic component in the cobalt compounds, as a rule, leads to an active absorption by the material in the micrometer range.

On the basis of fig. 1 and 2 it is possible to draw a conclusion that the spread of the sizes of the structure elements in the system on the basis of the cobalt compounds is wider than that of the system on the basis of silver. This fact may explain the presence of a wider spectral basis in dependences $D(\lambda)$ for the cobalt compounds (top diagram in fig. 3, *a*) in comparison with the basis of the spectra for the nanoparticles of silver (top diagram in fig. 3, *b*).

We should also point out that the assessments cited in [17] give a substantially smaller shift in relation to the

frequency, corresponding to the maximum of absorption ω_0 , $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ due to interaction of the particles with their environment, than it follows from the present study. According to [17], with the accuracy up to the summands of the first order of infinitesimality, the normalized frequency shift is given by the expression:

$$\frac{\Delta\omega}{\gamma_0} = q_i \frac{3\pi\varepsilon_0}{|\mathbf{d}_0|^2} \frac{1}{k^3} \text{Re}(\mathbf{d}_0^* \cdot \mathbf{E}_s), \quad (16)$$

where $\mathbf{E}_s$ is the secondary local field; γ_0 — speed of atomic relaxation; $\mathbf{d}_0$ — dipole moment, not depending on time; ε_0 — dielectric permeability of vacuum; q_i — inner quantum output. Shift of the frequencies in the system representing nuclear dipoles, due to interaction with its environment, is rather small and is within the limits of the width of a line [17].

In our case the shifts of frequencies are considerably bigger, therefore it is important to have a detailed account of the resonant interaction of a particle with the environment, especially in the conditions of a regular arrangement of the particles in the structure [18, 19], and also an account of the dependence of the absorption characteristics on the sizes of the elementary scatterers [1, 10]. Besides, an interaction between the resonant fluctuations, which leads to an essential shift of the positions of resonances, takes place.

As it is pointed out in [34, 38], the dipole model for a cluster of two, three and infinite number of particles, works while the distances between the centers of the particles are three times bigger, than their radiuses. In case of smaller distances, various modes of the plasmon resonances with various laws of dispersion [1, 33, 34] get excited. The efficiency of interaction of those modes with the electromagnetic radiation is higher, than for a regular dipole interaction. Contribution to Q_e from the interaction with the environment to parameter $\Omega_i^{(0)}$ in particular, may be determined by the excitement of the resonance modes of various kinds, which interact efficiently with radiation [1, 33, 34]. As it was marked, in particular, in [39], the monomers of a number of compounds are highly effective resonators, that is, the fluctuations of the local field in such an environment are essentially higher, than the external exciting field. Therefore, on the basis of the analysis of the experimental data it is possible to draw a conclusion that the synthesis of the compounds considered in the given work goes through the stage of formation of the monomers (of oligomer type).

The summands, which are part of $\Omega_i^{(0)}$ and $\Gamma_i^{(0)}$, contain information on streamlining of the scatterers into various kinds of the right structures, both one-dimensional, and two-dimensional [18, 19]. We should notice that MPEG ($\text{CH}_3\text{O}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_n\text{—H}$) represents an ordered structure with regularly located atoms

of oxygen with a strong ionization. Those polarized atoms of oxygen can attract the atoms of a metal (silver, cobalt, etc.), so that the arrangement of the scattering metal centers in such structures is regular. The photo of the structure of the silver clusters testifies to this (fig. 2).

It is necessary to pay attention to an additional opportunity of an intensive absorption of the electromagnetic radiation on the one-particle local states of the charge carriers, arising in the vicinity of a particle (dielectric, semi-conductor) in the quasi-zero-dimensional systems [40]. Synthesis of such heterophase systems as strongly absorbing materials in a rather wide range of the wavelengths could vary, depending on the kind of the used substances, and it provides new opportunities for development of the light absorbing and transforming coatings [40].

We should point out, that similar research works were done also with the magnetic materials for obtaining of the weakly reflecting coatings in the micrometer range of the wavelengths [41, 42]. Specificity of the response of the condensed environment to the external influence of radiation depends on the properties of the environment itself and on the range of the frequencies of the incident radiation. Essential properties of the composite environment are the characteristic sizes of the particles, which make part of it, and the specificity of the component materials. Thus, a direct excitation of the narrow plasmon resonances is possible in a nanostructured environment with the presence of the metals possessing small attenuation (gold, silver) in the range of frequencies of $10^{15} \dots 10^{16} \text{ s}^{-1}$. An important role is played by the electric component of the electromagnetic radiation. Excitation of the plasmon fluctuations in the regular crystal substances of the macroscopic sizes is possible only under special conditions, whereas in the nanostructures the plasmon resonance arises under a direct influence of radiation on a nanosystem [1]. The range of the frequencies of the electromagnetic radiation, investigated in [41, 42], had an order, typical for an electronic paramagnetic resonance, i.e. $10^9 \dots 10^{10} \text{ s}^{-1}$, while the size of the particles was measured by micrometers. An essential role was played by the magnetic component of the electromagnetic radiation. Thus, by varying the components of the composite materials and their sizes, it was possible to receive the substances, active in various ranges of the electromagnetic radiation, for solving of various tasks, connected with a conversion of the incident radiation into the other kinds of excitations.

In conclusion, we will point to the analogy between the mechanical system and the investigated structure from the nanocomposite environment, which interacts with the incident electromagnetic radiation. The system consisting of two mechanical pendulums, connected by the elastic forces in the external field of gravity, has two own frequencies shifted in relation to the independent

frequencies of the isolated pendulums [43, 43]. Besides, during excitement of the two modes, the width of the resonant curve is more narrow $|\Delta\omega_n| = \gamma/2$, compared with the width of the line, equal to γ for an isolated oscillator. The connected oscillators are a kind of "a band filter", they weaken the influence of the external force with frequency ω , which is beyond the interval (ω_2, ω_1) , where ω_1, ω_2 are the own frequencies of the system of the connected oscillators [43, 44]. The basis of the transformation of energy in the mechanical and electromagnetic cases is common — it is an interaction of the oscillating systems. Thus, the investigated coatings, which represent interacting cluster formations with a complex spectrum of absorption, can serve for an effective absorption and transformation of the energy of the external electromagnetic radiation.

Conclusion

Research was done of the optical properties of the synthesized fine-disperse compounds of various substances, which demonstrated rather sharp, narrow peaks in the spectra of the optical density, connected with excitation of the plasmon modes, localized in small areas. The number, height and position of the characteristic peaks changed during the synthesis, and also due to the changes of the controllable parameters of the system. The phenomenological theory of generalization of a set of the available modeling notions about the process of dispersion of light by small particles was developed. The received generalized formula, describing the absorption of light in the environment, which contains scatterers of small sizes, takes into account the contributions of various effects, including the ordered chains of the elementary scatterers. This allows us to explain the presence of the narrow intensive peaks in the absorption spectra. An analysis was done from the point of view of excitation of the localized plasmon modes. A bulk analysis allows us to draw a conclusion that the properties of the composite nano structured environment essentially depend on the kind of the materials and the characteristic sizes of the separate components of the system. The structures from the materials, active during excitation of the plasmon resonances, have the characteristic sizes of nanometers, whereas the materials absorbing the radiation in the microwave range contain magnetic substances and have the characteristic sizes of micrometers. The received results allow us to develop the coatings, which would interact actively with the electromagnetic radiation in various ranges of the wavelengths.

The photos of the structures were made with the use of the equipment of Diagnostics of Micro- and Nanostructures Co. and with the financial support of the Ministry of Education and Science of the Russian Federation.

References

1. Klimov V. V. *Nanoplazmonika*. Moscow: Fizmatlit. 2009. 480 p.
2. Wang Y., Plummer E. W., Kempa K. Foundations of plasmonics, *Advances in Physics*, 2011, vol. 60, no. 5, pp. 799–898.
3. Geddes C. D. (ed.). *Review in Plasmonics-2010*. NY, Dordrecht, Heidelberg, London: Springer. 2012. 334 p.
4. LeRu E. C., Etchegoin P. G. *Principles of surface enhanced Raman spectroscopy and related plasmonic effects*. Amsterdam: Elsevier, 2009. 663 p.
5. Hill M. T., Marell M. J. H. Surface emitting nanocavity lasers. *Advances in Optical Technologies*, 2011, vol. 2011, pp. ID 314952.
6. Vajnshtejn Ju. S., Gorjachev D. N., Ken O. S., Sreli O. M. Poverhnostnye plazmon-poljaritony v kompozitnoj sisteme poristij kremnij — zoloto, *FTP*, 2015, vol. 49, Iss. 4, pp. 453–458.
7. Purcell E. M., Pennypacker C. R. Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains, *Astrophys J.*, 1973, vol. 186, pp. 705–714.
8. Draine B., Flatau P. J. Discrete-dipole approximation for scattering calculations, *J. Opt. Soc. Am. A.*, 1994, vol. 11, no. 4, pp. 1491–1499.
9. Van de Hulst H. C. *Light scattering by small particles*. Inc. NY: Dover Publications. 1981. 470 p.
10. Bohren C. F., Huffman D. R. *Absorption and scattering of light by small particles*. NY: Jon Wiley & Sons. 1998. 530 p.
11. Kresin V. Photoabsorption of small metal clusters: surface and volume modes, *Phys. Rev. B.*, 1990, vol. 42, pp. 3247–3252.
12. Zalevsky Z., Abdulhalim I. *Integrated nanophotonic devices*. Elsevier: Amsterdam. 2010. 259 p.
13. Savinskij N. G., Vasil'ev S. V., Naumov V. V., Solov'ev M. E., Shvyrkova N. S. Okislenie termorasshirennogo grafita, *Vestnik JarGU. Serija Estestvennye i tehicheskie nauki*, 2013, no. 4, pp. 73–79.
14. Herricks T., Chen J., Xia Y. Polyol synthesis of platinum nanoparticles: control of morphology with sodiumnitrate, *Nano Letters*, 2004, vol. 4, no. 12, pp. 2367–2371.
15. Mallick K., Witcom M. J., Scurrill M. S. Self-assembly of silver nanoparticles in a polymer solvent: formation of a nanochain through nanoscale soldering, *Mater. Chem. and Phys.*, 2005, vol. 90, pp. 221–224.
16. Quinten M. *Optical properties of nanoparticle systems. Mie and beyond*. Weinheim, Germany. Wiley VCH Verlag. GmbH & Co. KGaA, 2011. 488 p.
17. Novotny L., Hecht B. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, UK. 2006. 539 p.
18. Zao L. L., Kelly K. L., Schatz G. C. *The extinction spectra of silver nanoparticle arrays: influence of array structure on plasmon resonance wavelength and width*. 2003, vol. 107, pp. 7343–7350.
19. Zou S., Janel N., Schatz G. C. Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon lineshapes, *J. Chem. Phys.*, 2004, vol. 120, no. 23, pp. 10871–10875.
20. Markel V. A., Pustovit V. N., Karpov S. V., Obuschenko A. V., Gerasimov V. S., Isaev I. L. Electromagnetic density of states and absorption of radiation by aggregates of nanoparticles with multipole interactions, *Phys. Rev. B*, 2004, vol. 70, pp. 054202.
21. Shabbazyan T., Stockman M. I. *Plasmonics: Theory and Applications*. Dordrecht, Heidelberg, NY, London. Springer, 2013. 631 p.
22. Draine B. T., Goodman C. F. Beyond Clausius-Mossotti: wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation, *Astrophys. J.* 1993, vol. 405, pp. 685–697.
23. Bozhevolny S. *Plasmonic. Nanoguides and Circuits*. Singapore: Pan Stanford Publishing. 2009. 441 p.
24. Blakemore J. S. *Solid State Physics*, Philadelphia—London—Toronto: W. B. Saunders Company, 1970. 480 p.
25. Zou S., Schatz G. C. Response to "Comments on "Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon line shapes". *J. Chem. Phys.*, 2005, vol. 122, pp. 097102.
26. Meier M., Wokaun A. Enhanced fields on large metal particles: dynamic depolarization, *Optics Letters*, 1983, vol. 8, no. 11, pp. 581–583.
27. Markel V. *Divergence of dipole sums and the nature of non-lorenzian exponentially narrow resonances in one-dimensional periodic arrays of nanosphere*. URL: <http://arXiv:physics/05051186v1>.
28. Ekardt W. Wave-vector dispersion versus angular-momentum dispersion of collective modes in small metal particles, *Phys. Rev. B.*, 1987, vol. 36, no. 8, pp. 4483–4486.
29. Shalaev V. M., Botet R., Butenko A. V. Localization of collective dipole excitations on fractals, *Phys. Rev. B.*, 1993, vol. 48, no. 9, pp. 6662–6664.
30. Tsai D. P., Kovacs J., Wang Z., Moskovits M., Shalaev V. M., Suh S., Botet R. Photon scanning tunneling microscopy images of optical excitations of fractal metal colloid clusters, *Phys. Rev. Lett.* 1994, vol. 72, no. 26, pp. 4149–4152.
31. Stockman M. I., Pandey L. N., George T. F. Inhomogeneous localization of polar eigenmodes in fractals, *Phys. Rev. B.*, 1996, vol. 53, no. 5, pp. 2183–2186.
32. Born M., Wolf E. *Principles of optics*. Oxford, London, Edinburgh, NY, Paris: Pergamon Press. 1968. 719 p.
33. Klimov V. V., Guzatov D. V. Strongly localized plasmon oscillations in a cluster of two metallic nanospheres and their influence on spontaneous emission of an atom, *Phys. Rev. B.*, 2007, vol. 75, pp. 024303.
34. Zabkov I. V., Klimov V. V., Treshin I. V., Glazov O. A. Plazmonnye kolebanija v linejnom klastere sfericheskikh nanochastich, *Kvantovaja elektronika*, 2011, vol. 41, no. 8, pp. 742–747 (<http://www.quantum-electron.ru>).
35. Tribelsky M. I., Luk'yanchuk B. S. Anomalous Light Scattering by Small Particles, *Phys. Rev. Letters*, 2006, vol. 97, pp. 263902.
36. Kyjatkovskij O. E., Zaharova I. B., Ziminov V. M. Ab initio raschety supramolekuljarnyh kompleksov fullarena S60 s CdTe i CdS, *FTT*, 2014, vol. 56, Iss. 6, pp. 1240–1245.
37. Vaganova E. I., Mironenko A. A., Paporkov V. A., Rud' N. A., Rudyj A. S., Prokaznikov A. V. Uvelichenie jeffektivnosti raboty fotoelektricheskikh jelementov nanostrukturirovanijem poverhnosti, *Mikroelektronika*, 2011, vol. 40, no. 1, pp. 36–44.
38. Claro F. Theory of resonant modes in particulate matter, *Phys. Rev. B.*, 1984, vol. 30, no. 9, pp. 4989–4999.
39. Markel' V. A., Muratov L. S., Shtockman M. Optical properties of fractals: theory and numerical simulations. *Sov. Phys. JETP*, 1990, vol. 71, no. 3, pp. 455–464.
40. Pokutnij S. I. Pogloshhenie i rassejanie sveta v kvazinul'mernyh strukturah. II. Pogloshhenie i rassejanie sveta na odnochastichnyh lokal'nyh sostoianijah zariada, *FTT*. 1997, vol. 39, no. 4, pp. 606–609.
41. Yan L., Wans J., Ye Yu., Hao Z., Liu P., Li F. Broadband and thin microwave absorber of nickel—zinc ferrite/carbonyl iron composite, *Journal of Alloys and Compounds*, 2009, vol. 487, pp. 708–711.
42. Guo J., Duan Y., Liu L., Chen L., Liu S. Electromagnetic and microwave absorption properties of carbonyl-iron/Fe91Si9 composites in gigahertz range, *Journal of Electromagnetic Analysis and Applications*, 2011, vol. 3, pp. 140–146.
43. Pavlenko Ju. G. *Lekcii po teoreticheskoj mehanike*. Moscow: Fizmatlit. 2002. 392 p.
44. Pavlenko Ju. G. *Zadachi po teoreticheskoj mehanike*. Moscow: Fizmatlit. 2003. 536 p.

МАТЕРИАЛОВЕДЧЕСКИЕ И ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ МНСТ SCIENCE OF MATERIALS AND TECHNOLOGICAL BASICS OF MNST

УДК 539.61 + 621.382

Д. Д. Рискин, канд. техн. наук, вед. инженер, e-mail: dr182@mail.ru,

С. А. Жукова, канд. техн. наук, нач. комплекса, Д. Ю. Обижаев, канд. техн. наук, нач. отдела,

В. Е. Турков, канд. физ.-мат. наук, нач. Центра

ФГУП "Центральный научно-исследовательский институт имени Д. И. Менделеева", г. Москва

ИЗМЕРЕНИЕ ПРОЧНОСТНЫХ СВОЙСТВ АДГЕЗИОННЫХ СОЕДИНЕНИЙ, ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ ТЕРМОКОМПРЕССИОННОГО СРАЩИВАНИЯ ПЛАСТИН, ПРИ ИЗГОТОВЛЕНИИ МЭМС

Поступила в редакцию 23.10.2015

Представлена методика измерения прочности адгезионных соединений, полученных путем термокомпрессионного сращивания двух кремниевых пластин с использованием меди в качестве диффузионного слоя. Методика основана на стандартном испытании образцов на разрыв. В методику внесены поправки, обусловленные типом и размером образца, его свойствами и требованиями к точности и воспроизводимости результатов испытания, характерными для адгезионных соединений элементов микроэлектромеханических устройств.

Ключевые слова: МЭМС, корпусирование, термокомпрессионное сращивание, диффузионный слой, прочность соединения, коэффициент критической интенсивности напряжения

Введение

В настоящее время технологии производства и практического применения микроэлектромеханических чувствительных элементов (МЭМ ЧЭ), являющихся основными элементами микроэлектромеханических систем (МЭМС), развиваются очень интенсивно. Такие элементы выполняют различные функции в различных условиях и средах и занимают все большее место в жизни человека. К основным типам таких систем можно отнести, например, датчики давления, ИК сенсоры, датчики движения (микроакселерометры и микрогирометры), высокочастотные резонаторы, болометры и пр. При производстве подобных элементов одним из самых сложных этапов технологического процесса является корпусирование, так как процесс его реализации в конечном счете влияет на характеристики устройства. При корпусировании элемента в нем могут создаваться избыточное давление, определенная газовая среда или вакуум. При этом для того чтобы характеристики таких элементов оставались постоянными и не менялись со временем, корпус элемента должен быть герметичен, удерживать избыточное давление или определенную среду внутри.

В связи с этим важной проблемой становится контроль характеристик образцов ЧЭ после процесса корпусирования. В настоящее время известно несколько способов корпусирования: на уровне отдельных элементов и на уровне пластин (матричное корпусирование) [1, 2]. Необходимо контролировать не только герметичность образца, но и прочность полученного соединения, так как на разные типы ЧЭ могут воздействовать различные нагрузки и различная среда. В настоящее время существует небольшое число методик, с помощью которых можно контролировать прочность полученного соединения в случае реализации технологии корпусирования на уровне пластины. Все они имеют свои плюсы и минусы, а также определенные ограничения в специфике их применения, это зависит и от типа образца, и от требований к точности измерения.

В данной статье приведена методика контроля прочностных свойств адгезионных соединений образцов после процесса корпусирования, которая, на наш взгляд, наиболее оптимальна при испытании ЧЭ микроакселерометра и микрогирометра. Образцы корпусировались с помощью термокомпрессионного соединения (сращивания) с исполь-

зованием токопроводящего промежуточного слоя. В качестве токопроводящего и диффузионного слоя использовалась медь.

Объекты и методы исследования

Для исследования прочности адгезионных соединений, полученных методом термокомпрессионного сращивания, использовали образцы, полученные путем сращивания двух кремниевых пластин с применением меди в качестве диффузионного слоя. Схематическое изображение тестового кристалла показано на рис. 1.

Тестовые образцы были выполнены из кремниевых пластин, сращенных между собой через слой меди и порезанных на кристаллы. Толщина кремниевых пластин (h_1 и h_2) составляла 380 мкм (рис. 1, а). Размер кристалла после резки: $W = 10$ мм, $B = 10$ мм (рис. 1, б). Кристалл сращивался не полностью, а только его часть, как показано на рис. 1. Это необходимо для того, чтобы полученные статистические данные были более точными, так как в таком случае разрыв пластин будет начинаться всегда в одном и том же месте. Угол $\theta = 90^\circ$, расстояние от края кристалла до сращенной части пластины (a_0) 1 мм. Для улучшения адгезии меди к кремнию дополнительно пластины окислялись и на них напылялся слой тантала. Толщина слоя меди составляла 300 нм, толщина подслоя тантала около 50 нм, толщина оксидного слоя 100 нм (рис. 2, см. третью сторону обложки).

В качестве основы для образцов использовали пластины монокристаллического кремния марки КЭС-0,007 диаметром 100 мм. Отмывку пластин перед нанесением функциональных слоев проводили на двухкамерной установке химической отмывки пластин SAT-2080 (215P) SSE. Отмывку выполняли в течение 23 мин при частоте вращения 800 мин^{-1} .

Окисление пластин проводили в многофункциональной печи ATV PEO 603 в кислородной среде при температуре 1100°C из расчета 45 мин на 100 нм оксида. Расход кислорода составил 1,5 л/мин.

Слой тантала и меди формировали методом магнетронного распыления на установке АКТАН ВМИУ-200 (VSM200). Осаждение металлов проводили в газовой смеси азота и аргона. Значение тока магнетрона выбирали в диапазоне 1...5 А. Объемный расход азота варьировали в диапазоне 1,08...1,44 л/ч, при этом расход аргона поддерживался постоянным на уровне 0,36 л/ч.

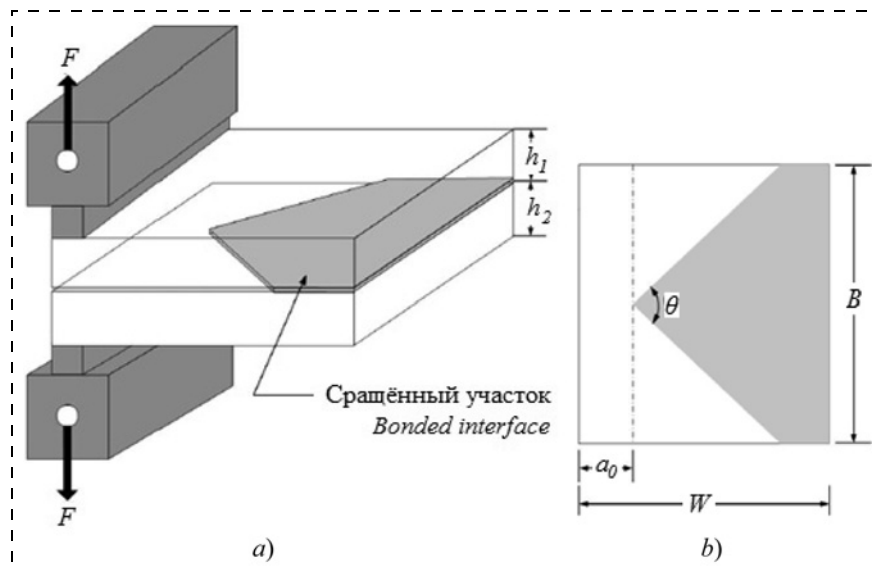


Рис. 1. Схематическое изображение тестового кристалла, полученного методом термокомпрессионного сращивания [3]

Fig. 1. Scheme of the test crystal obtained by thermocompression splicing [3]

Топологический рисунок формировали методом контактной литографии с применением установки совмещения и экспонирования SUSS MA6/BA6 с использованием фотошаблона, показанного на рис. 3. Топологический рисунок составлен таким образом, чтобы разрыв адгезионных соединений всегда начинался с одного места и происходил по одной и той же схеме в каждом последующем образце.

Травление металлов для получения топологического рисунка проводили в установке жидкостного травления КС-1 с помощью фтористоводородной кислоты. Весь процесс травления длится 10...15 мин при комнатной температуре.

Совмещение и сращивание пластин проводили на установке совмещения и сращивания кристаллов

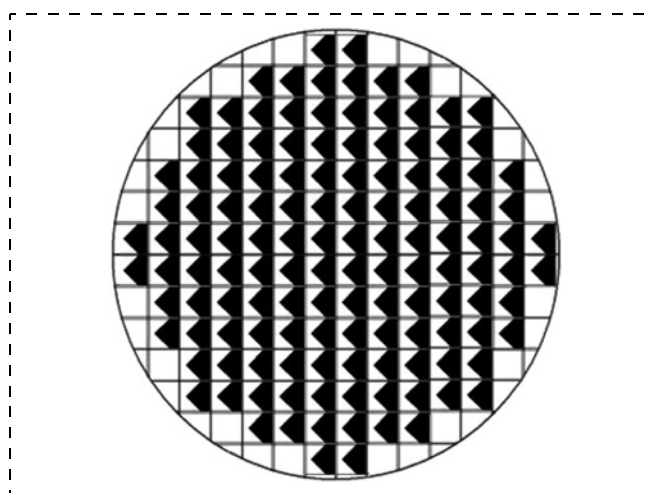


Рис. 3. Фотошаблон для получения топологического рисунка на кремниевых пластинах

Fig. 3. Photo mask for obtaining of the topological pattern on the silicon wafers

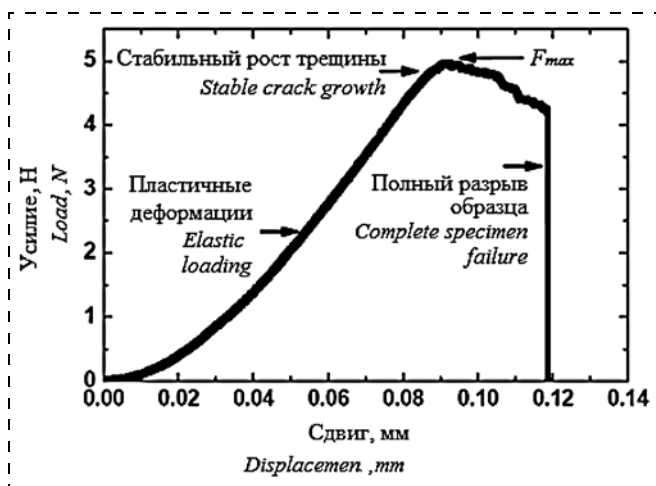


Рис. 4. Типовая диаграмма зависимости сдвига от прилагаемого усилия [3]

Fig. 4. Typical dependence graph of the shift from the applied force [3]

AML AWB-04 при постоянном давлении 18 000 Н и температуре 450 °С. Время процесса 60 мин.

Резку полученных после срачивания пластин на кристаллы проводили с применением лазерного центра механообработки LMS 3000 Series/LD.

Прочность сращенного соединения полученных образцов исследовали на универсальной испытательной машине Inspekt 5 table blue. Скорость растяжения при испытании на разрыв составляла 0,1 мм/мин. В результате испытания строили диаграмму зависимости сдвига от прилагаемого усилия, по которой определяли максимальную нагрузку F_{max} , которую выдерживает образец (рис. 4).

После определения максимальной нагрузки рассчитывали прочность соединения G_C через коэффициент критической интенсивности напряжения K_{IC} :

$$G_C = \frac{1 - \nu^2}{E} K_{IC}^2, \quad (1)$$

где E — модуль Юнга; ν — коэффициент Пуассона для материала, используемого в качестве диффузионного слоя.

В свою очередь коэффициент критической интенсивности напряжения рассчитывали через максимальную нагрузку, полученную по диаграмме усилия с разрывной машины, по уравнению

$$K_{IC} = \frac{F_{max}}{B\sqrt{W}} Y_{min}, \quad (2)$$

где B и W — геометрические параметры образца (см. рис. 1, b); Y_{min} — минимальное значение геометрической функции, рассчитываемая по формуле

$$Y_{min} = (24,42 + 81,23\alpha_0) \times \sqrt{\left(\frac{h_{total}\eta}{1+\eta}\right)^{(-2,91)} + \left(\frac{h_{total}}{1+\eta}\right)^{(-2,91)}}, \quad (3)$$

где α_0 — отношение длины трещины ($\alpha_0 = a_0/W$) (см. рис. 1, b); h_{total} — общая толщина образца ($h_{total} = h_1 + h_2$); η — соотношение толщин ($\eta = h_2/h_1$); h_1 и h_2 — толщины кремниевых пластин (см. рис. 1, a).

После испытания образца на разрыв проводили анализ его поверхности в месте разрыва с использованием аналитического автоэмиссионного электронного микроскопа Carl Zeiss Crossbeam Neon 60. Это необходимо для определения места, в котором произошел разрыв сращенного соединения. Как показано на рис. 5 (см. третью сторону обложки), разрушение образца может пойти не только по границе срачивания, но и в слое металла, в данном случае меди, или по границе Ta—Cu в случае плохой адгезии металлов. Последние варианты могут свидетельствовать о каких-либо недочетах или нарушениях в технологии нанесения слоев металла на кремниевые пластины.

Возможности методики и результаты ее испытания

Рассмотренная методика позволяет оценить прочностные свойства сращенных кристаллов с различной конфигурацией топологического рисунка и с использованием для срачивания различных металлов. Топологический рисунок может представлять собой как некую рамку из металла, так и более сложный рисунок или форму, обусловленную конструкцией образцов, изготавливаемых с применением термокомпрессионного срачивания или корпусирования образца ЧЭ. Методика позволяет оценить прочностные свойства кристаллов, при срачивании которых в качестве материала для корпусирования могут использоваться как токопроводящие металлы (золото, медь, алюминий), так и непроводящие электрический ток промежуточные слои (суспензии стеклопорошка, оксиды кремния, алюминия и циркония, нитрид кремния и другие неорганические электроизоляционные материалы).

С помощью данной методики можно также провести математическое моделирование роста трещины в соединительном слое или смоделировать данный процесс для элементного анализа в программах типа SolidWorks или ANSYS. Для этого используют образцы, показанные на рис. 1, изменяя площадь сращенного соединения (меняя a_0 от 1 до 4 мм). Это поможет ускорить и оптимизировать процесс выборов режимов подготовки и срачивания образцов путем предварительного анализа и исключения заведомо недопустимых вариантов. Пример модели для элементного анализа показан на рис. 6.

При тестировании метода использовали образцы, показанные на рис. 1, полученные методом термокомпрессионного срачивания с диффузи-

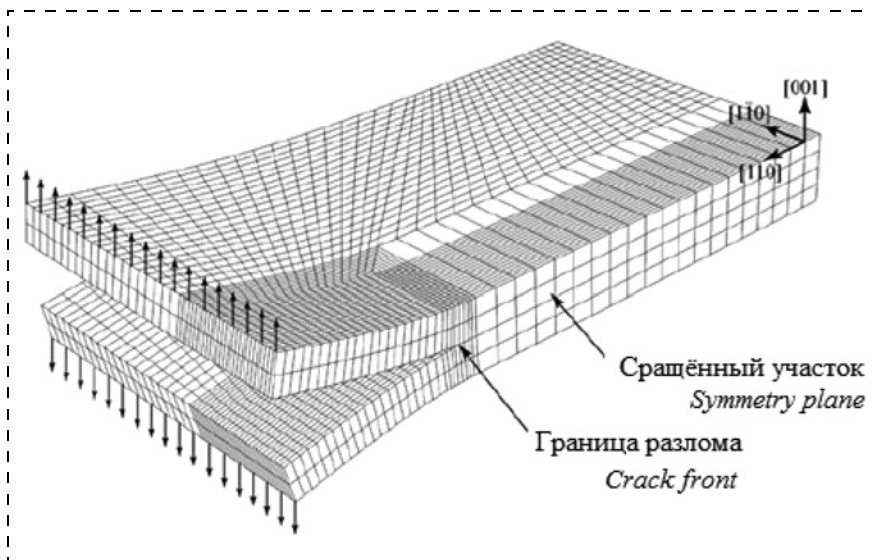


Рис. 6. Модель элементного анализа сращенных кристаллов [3]
Fig. 6. Elemental analysis model of the spliced crystals [3]

онным слоем из меди. Изготовленные кристаллы подвергали разрыву с дальнейшим анализом поверхности и состава металла по площади разрыва. Результаты испытания образца на прочность приведены на рис. 7, результаты анализа поверхности слоя после разрыва — на рис. 8 (см. третью сторону обложки).

Основываясь на уравнениях (1)—(3), можно выразить значение прочности полученного соединения для меди через максимальную нагрузку. Получается, что $G_C = 0,05F_{\max}$. С учетом данных, полученных при испытании образца на разрыв, прочность соединения составляет $\sim 0,19 \text{ Н/мм}^2$. Из данных, представленных на рис. 8 (см. третью сторону обложки), видно, что разрыв произошел в слое меди, о чем свидетельствует химический анализ поверхности (рис. 8, б).

Все данные были получены для тестовых образцов, при получении которых не проводилась пол-

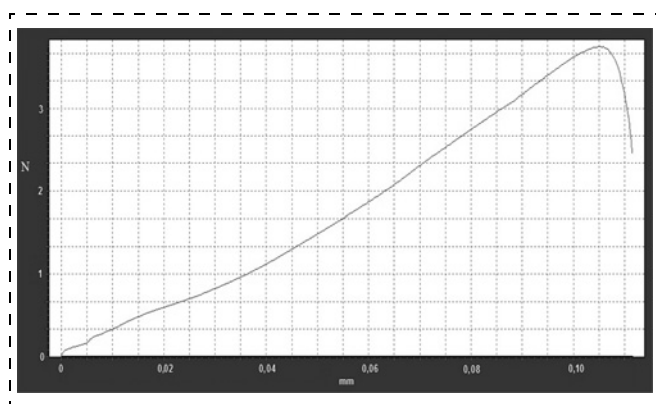


Рис. 7. Типовые данные, полученные в результате испытания образца на разрыв
Fig. 7. Typical data obtained at tensile test of the sample

ная обработка процесса термокомпрессионного сращивания с использованием меди в качестве диффузионного слоя. Не проводилась полная подборка режимов сращивания и подготовки образцов. При проведении должным образом всего процесса получения образцов данные будут существенно различаться. Основной целью испытания была проверка работоспособности методики исследования. Данные приведены с целью показать типовые результаты, которые получаются при использовании данной методики.

Заключение

В статье описана методика определения прочности соединения образцов, полученных путем термокомпрессионного сращивания с использованием меди в качестве диффузионного слоя. Данная методика подходит и для образцов, в которых в качестве диффузионного слоя использовались и другие металлы (золото, медь, алюминий) или не проводящие электрический ток промежуточные слои (суспензии стеклопорошка, оксиды кремния, алюминия и циркония, нитрид кремния и другие неорганические электроизоляционные материалы).

Данные и значения, приведенные в работе, получены с тестовых образцов и предназначены для демонстрации работоспособности описанной методики. В случае отработки процесса сращивания или проведения исследований на образцах, полученных по отработанным технологиям, результаты будут отличаться от тех, что представлены в данной статье.

Список литературы

1. Бабаевский П. Г., Жукова С. А., Обижаев Д. Ю., Гринькин Е. А., Турков В. Е., Резниченко Г. М., Рискин Д. Д., Бычкова Ю. А. Вакуумплотное матричное корпусирование сенсорных микроэлектромеханических систем (аналитический обзор). Часть 1. Процессы соединения и разрезания пластин, локальная герметизация (вакуумное капсулирование) чувствительных элементов сенсорных микроэлектромеханических систем // Нано- и микросистемная техника. 2014. № 3 (164). С. 3—13.
2. Бабаевский П. Г., Жукова С. А., Обижаев Д. Ю., Гринькин Е. А., Турков В. Е., Резниченко Г. М., Рискин Д. Д., Бычкова Ю. А. Вакуумплотное матричное корпусирование сенсорных микроэлектромеханических систем (аналитический обзор). Часть 2. Формирование вакуумплотных электрических выводов, способы сохранения и контроля вакуума в рабочих полостях и общие тенденции развития технологии корпусирования с МЭМС // Нано- и микросистемная техника. 2014. № 4 (165). С. 3—11.
3. Tadepalli R. Characterization and Requirements for Cu—Cu Bonds for Three-Dimensional Integrated Circuits // Massachusetts Institute of Technology. 2007. Feb. 210 p.

Measurement of the Strength Properties of the Adhesive Junctions Obtained by Thermocompression Wafer Bonding for Manufacture of MEMS

The text below describes the technique of measuring of the bond strength of the adhesive junctions obtained by thermocompression bonding of two silicon wafers with the use of copper as a diffusion layer. The method is based on a standard fracture test of the bonded samples. The method was improved with amendments determined by the type and size of the samples, their properties and requirements to the accuracy and reproducibility of the test results, typical for the adhesive junctions of the parts of MEMS devices.

Keywords: MEMS, packaging, thermocompression bonding, diffusion layer, bond strength, critical stress intensity factors

Introduction

The technologies of production and application of MEMS sensor elements (MEMS SE), which are the main elements of the microelectromechanical systems (MEMS), develop rapidly. Such elements have different functions in different conditions and environments, and occupy an important place in human life. In general, the systems include, for example, pressure sensors, infrared sensors, motion sensors (microaccelerometers and gyroscopes), high-quality resonators, bolometers and other. Packaging is one of the most difficult stages of the technology in the production of these, since its implementation ultimately affects on the devices' characteristics. At packaging on an element, it can create excessive pressure, gas atmosphere or vacuum. In an effort to the characteristics of the elements remain constant and did not change over time, the case must be sealed, can keep the overpressure or specific environment.

An important problem is the control of characteristics of SE samples after packaging. Several methods of packaging are known: at the level of individual elements and at the level of the wafers (matrix packaging) [1, 2]. It is necessary to control the tightness of a sample and the strength of the resulting junction, since various loads and environments can affect on different SE types. There are techniques that can be used to control the strength of the resulting junction in case of the wafer-level packaging technology. All of them have advantages and disadvantages, and also some specific limitations in the application; it depends on the type of a sample and on required accuracy.

This article describes a method of controlling of the strength properties of the adhesive junctions of the samples after packaging that most optimal for testing of SE of a microaccelerometer and a gyroscope. The samples were packaged using thermocompression bonding (splicing) using the conductive intermediate layer. The copper was used as the conductive and diffusion layer.

Objects and methods of research

The samples obtained by splicing of two silicon wafers using copper as a diffusion layer were used to investigate the strength of the joints, obtained by the thermocompression jointing. The image of the test chip is shown in fig. 1.

The test specimens are made of silicon wafers, spliced together via a layer of copper and cut into crystals. The

wafer's thickness (h_1 and h_2) is 380 μm (fig. 1, *a*). The crystal size after cutting: $W = 10$ mm, $B = 10$ mm (fig. 1, *b*). The crystal is spliced not completely, but only partially (fig. 1). It is necessary that the resulting statistics are more accurate as the gap of the wafers will always start in the same place. The angle $\theta = 90^\circ$, the distance from the edge of the crystal to the spliced part of the wafer (a_0) — 1 mm. To improve the adhesion of the copper to the silicon, wafers were oxidized and the tantalum layer was sputtered on them. The thickness of the copper layer was 300 nm, the thickness of the tantalum underlayer was 50 nm, the thickness of the oxide layer — 100 nm (fig. 2, see 3-rd side of cover).

The single-crystal silicon wafers of CES 0,007 with the diameter of 100 mm were used as the basis. The cleaning of the wafers prior to application of the functional layers was carried out on a two-chamber installation of chemical cleaning of wafers SAT-2080 (215P) CCE. The washing was performed for 23 min at a speed of 800 min^{-1} .

The oxidation of the wafers was carried out in an oven ATV PEO 603 in an oxygen environment at a rate of 1100°C for 45 min for 100 nm of oxide. The oxygen flow rate was 1,5 l/min.

The layers of tantalum and copper were formed by magnetron sputtering on the installation AKTAN VMIU-200 (VSM200). The deposition of metals was carried out in a gaseous mixture of nitrogen and argon. The magnetron current was selected in the range of 1...5 A. The volumetric flow rate of nitrogen was varied in the range of 1,08...1,44 l/h. The argon flow was maintained constant at 0,36 l/hr.

The topological pattern was formed by contact lithography using the alignment and exposure installation SUSS MA6/BA6 using a mask (fig. 3). The topological pattern was formed in such a way as to the break of the adhesive joints started from one place and was developed by the same pattern in each subsequent sample.

Etching of metals for topological pattern was performed in the installation of wet etching KS-1 with hydrofluoric acid. The etching lasts for 10...15 min at room temperature.

Joining and splicing of the wafers was carried on the installation AML AWB-04 at a constant pressure of 18 000 N and temperature of 450°C . Time — 60 min.

The cutting of the wafers obtained after splicing on the crystals was carried out using laser machining center LMS 3000 Series/LD.

Bond strength of the samples was examined in the testing machine Inspekt 5 table blue. The stretching speed in the tension test was 0,1 mm/min. As a result of the test, the dependence of the shift from the attached force was calculated, by which the maximum load $F_{\max}$ was determined, withstood by the sample (fig. 4). After determining of the maximum load, the bond strength G_C was calculated through the critical stress intensity factor K_{IC} :

$$G_C = \frac{1-\nu^2}{E} K_{IC}^2, \quad (1)$$

where E — Young's modulus; ν — Poisson's ratio for the material used as a diffusion layer. In turn, the critical stress intensity factor was calculated by the maximum load, obtained on the forces chart from the testing machine,

$$K_{IC} = \frac{F_{\max}}{B\sqrt{W}} Y_{\min}, \quad (2)$$

where B and W — the geometrical parameters of the sample (see. fig. 1, b); $Y_{\min}$ — minimal geometric function, which is calculated by the formula

$$Y_{\min} = (24,42 + 81,23\alpha_0) \times \sqrt{\left(\frac{h_{total}\eta}{1+\eta}\right)^{(-2,91)} + \left(\frac{h_{total}}{1+\eta}\right)^{(-2,91)}}, \quad (3)$$

where α_0 is the ratio of the crack length ($\alpha_0 = a_0/W$) (see. fig. 1, b); h_{total} — the total thickness of the sample ($h_{total} = h_1 + h_2$); η — thickness ratio ($\eta = h_2/h_1$), h_1 and h_2 — thickness of the silicon wafers (fig. 1, a).

After the tensile test, the specimen's surface in the rupture place was analyzed using analytical field-emission electron microscope Carl Zeiss Crossbeam Neon 60 to determine the point at which the joint was broken. The destruction of the sample can go over the boundary of the splice and in the metal layer, in this case — copper, or along the border Ta—Cu metal in case of poor adhesion of metals (fig. 5, see 3-rd side of cover). The last versions may indicate the disadvantages or violations in the technology of metal layers application on the silicon wafers.

Features of the technique and the results of its tests

The reviewed procedure enables to evaluate the mechanical properties of the spliced crystals with a different configuration of the topological pattern and using different metals. The pattern can be a kind of a frame made of metal or more complex pattern or shape due to the design of the samples produced using thermocompression jointing or packaging of SE. The method allow to evaluate the strength properties of the crystals, where the conductive metals (gold, copper, aluminum) and intermediate layers non-conductive to electrical current (slurry of glass powder, silica, alumina-zirconia, silicon nitride and other inorganic insulating materials) can be used as the packaging materials at their spicing.

The technique can also perform simulation of the crack growth in the joining layer or simulate process for elementary analysis in SolidWorks and ANSYS software packages. For this purpose, the samples are used (fig. 1), changing the area of spliced joint (varying a_0 from 1 to 4 mm). This will help to speed up and to op-

timize the selection of preparation modes and splicing of samples in the preliminary analysis, excluding obviously unacceptable options. The example of the model of the elementary analysis is shown in fig. 6.

In the tests we used the samples (fig. 1) obtained by thermocompression jointing with the diffusion layer of copper. The produced crystals were broken with the analysis of the surface and the composition of the metal on the breaking area. The results of the strength test are shown in fig. 7, and the analysis of the layer's surface test after the disruption — in fig. 8.

Based on equations (1)–(3), we can express the strength of the resulted joint for copper through the maximum load. $G_C = 0,05F_{\max}$. Taking into account the data obtained in the tensile test of the sample, the bond strength is about $\sim 0,19$ N/mm². The data (fig. 8, see 3-rd side of cover) shows that the happened in the copper layer, as indicated by chemical analysis of the surface (fig. 8, b).

All data were obtained for the test samples, which were not exposed to full testing of thermocompression jointing using copper as a diffusion layer. A full selection of splicing modes and sample preparation were not conducted. The data vary significantly during the entire process. The main purpose of testing is the performance verification of the technique. The data is intended to show the typical results, which are obtained when using it.

Conclusion

The article describes the method of determining of the bond strength of the samples obtained during thermocompression splicing using copper as a diffusion layer. It is suitable for the samples in which other metals (gold, copper, aluminum) or a nonconductive intermediate layers (slurry of glass powder, silica, alumina-zirconia, silicon nitride and other inorganic insulating materials) are used as the diffusion layer.

The data and the values, given in the work, were obtained from the test samples and are intended to demonstrate the performance of the described technique. In developing of the spicing or studies on samples obtained by the developed technology, the results will differ from those presented in this article.

References

1. Babaeyevsky P. G., Zhukova S. A., Obizhaev D. Yu., Grinkin E. A., Turkov V. E., Reznichenko G. M., Riskin D. D., Bychkova Yu. A. Vakuumplootnoe matrichnoe korpusirovanie sensornih mikroelektricheskikh system (analiticheskiy obzor) Chast' 1. Processi soedineniya i razrezaniya plastin, lokal'naya germetizaciya (vakuumnoe kapsulirovanie) chuvstvitel'nykh elementov sensornih microelectromechanicheskikh system, *Nano- i mikrosistemnaya tehnika*, 2014, no. 3 (164), pp. 3–13.
2. Babaeyevsky P. G., Zhukova S. A., Obizhaev D. Yu., Grinkin E. A., Turkov V. E., Reznichenko G. M., Riskin D. D., Bychkova Yu. A. Vakuumplootnoe matrichnoe korpusirovanie sensornih mikroelektricheskikh system (analiticheskiy obzor) Chast' 2: Formirovanie vakuumplootnykh elektricheskikh vivodov, sposobi sohraneniya i kontrolya vakuuma v rabochih polostyakh i obshnie tendencii razvitiya tehnologii korpusirovaniya s MEMS, *Nano- i mikrosistemnaya tehnika*, 2014, no. 4 (165), pp. 3–11.
3. Tadepalli R. Characterization and Requirements for Cu—Cu Bonds for Three-Dimensional Integrated Circuits, *Massachusetts Institute of Technology*. 2007. Feb. 210 p.

МОДЕЛИРОВАНИЕ И КОНСТРУИРОВАНИЕ МНСТ MODELLING AND DESIGNING OF MNST

УДК 004.414.23

А. А. Старых, аспирант, e-mail: anastasya.staryh@mail.ru,
Инженерно-технологическая академия Южного федерального университета,
Институт нанотехнологий, электроники и приборостроения (ИНЭП), г. Таганрог

МЕТОД СИНТЕЗА ЗАПОМИНАЮЩИХ ЭЛЕМЕНТОВ САМОСИНХРОННЫХ СХЕМ

Поступила в редакцию 02.10.2015

Рассмотрен метод синтеза функциональных блоков самосинхронных схем, объединяющих в себе комбинационную функцию и регистр хранения. На выходе таких функциональных блоков формируется необходимая функция с помощью двух схем на n -МОП-транзисторах, расположенных в левой и правой плоскостях относительно элемента памяти. Приведены правила синтеза функциональных блоков самосинхронных схем на примере реализации многоразрядного компаратора. Правильность предложенного метода синтеза подтверждена моделированием схем в программе OrCAD 16.6.

Ключевые слова: самосинхронная схема, асинхронный регистр, комбинационная функция, карта Карно, минтерм, элемент памяти, компаратор, моделирование

Введение

Самосинхронные схемы (СС-схемы) в настоящее время завоевывают пристальное внимание со стороны ученых. Такое положение дел обусловлено следующими преимуществами, которыми эти схемы обладают [1]:

- отсутствие системы синхронизации, разветвленность которой увеличивается при укрупнении схем, что сокращает расходы на реализацию аппаратуры;
- значительное увеличение быстродействия схем в сравнении с синхронными аналогами, которое ограничивается условиями эксплуатации и физическими параметрами;
- увеличенный срок службы вследствие устойчивости к старению по сравнению с синхронными аналогами;
- самопроверяемость и самодиагностируемость таких схем;
- прекращение работы в момент отказа элемента, что исключает выдачу ошибочных данных, а также дает возможность локализовать место возникновения неисправности, благодаря чему сокращается время исправления неполадки и повторного запуска системы;

- существенно меньшая мощность рассеяния и равномерность токопотребления по сравнению с синхронными аналогами.

Построение самосинхронной схемы

Самосинхронная схема [2] может состоять из блоков, показанных на рис. 1.

В СС-схему входят: запоминающий элемент (асинхронный регистр), осуществляющий хранение данных на время обработки; блок комбинационной функции, который выполняет обработку данных; индикатор переходного процесса, вырабатывающий сигнал, длительность которого равна длительности переходного процесса; схема управления, выдающая сигнал "Старт" для инициирования процесса; блок разрешения передачи данных. При разрешении работы СС-схемы (сигнал "Старт" равен логической "1") блок разрешения передачи данных передает данные на асинхронный регистр, который запоминает входную информацию. Начало процесса устанавливает сигнал "Старт" в состоянии логического "0", в результате чего все сигналы на выходе блока разрешения передачи данных становятся равными нулю. Запомненные в асинхронном регистре значения сигналов обрабатывает блок комбинационной функции. После окончания переходного процесса сигнал "Старт"

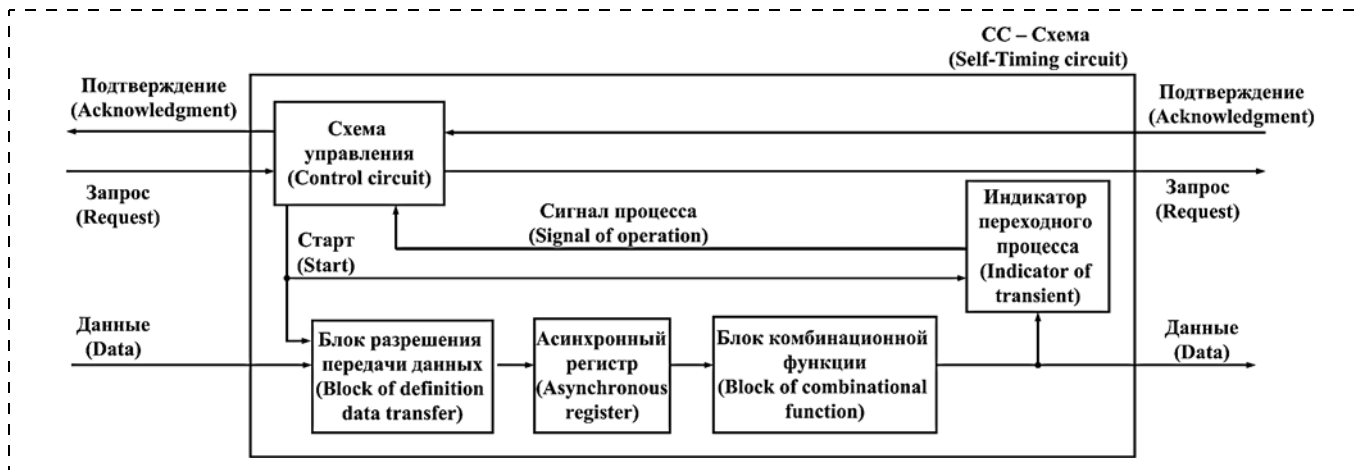


Рис. 1. Построение самосинхронной схемы

Fig. 1. Construction of self-timed circuit

становится равным логической "1" и начинается обработка следующей порции сигналов. Таким образом, схема не требует внешней синхронизации и синхронизируется внутренним сигналом окончания переходного процесса. Теория синтеза комбинационной функции — индикатора процесса широко представлена в литературе [3—5]. Блок разрешения и схема управления легко реализуются на элементах "логическое И". Асинхронный регистр не может быть реализован на логике DCVSL [6], так как обнуление всех входных сигналов приводит к отключению нагрузок, при этом выходной сигнал в триггере будет не запоминаться, а разрушаться. Ниже рассматривается синтез запоминающих асинхронных регистров.

Способ формирования запоминаемого сигнала

Рассмотрим структурную схему, показанную на рис. 2.

Схема симметрична и представлена двумя группами n -МОП-транзисторов. Левая группа n -МОП-транзисторов относится к формирователям единиц на выходе Q , правая группа — к формирователям нулей. Между собой они соединяются двумя инверторами, включенными встречно-параллельно, т. е. защелкой. При подаче на все входы предлагаемой схемы "логического 0", значение сигнала на выходах не изменится, т. е. запомнится. Такое свойство указанной схемы позволит использовать ее в качестве асинхронного регистра. С помощью такой схемы можно запоминать одиночные сигналы (рис. 3).

Но при таком построении СС-схема оказывается громоздкой. Более выгодно функцию запоминания "встроить" во входные каскады комбинационной схемы. В качестве примера в данной работе рассмотрим устройство асинхронного компаратора с элементом памяти во входных цепях комбинационного блока.

Синтез схемы, выполняющей операцию сравнения на "равно" в асинхронном двухпроводном компараторе

Компараторы являются устройствами сравнения, которые определяют отношения между двумя словами. Основными отношениями, через которые можно выразить остальные, можно считать два — "равно" и "больше" [7]. Для компаратора справедливы следующие критерии: если функция сравнения принимает единичное значение, то условие истинно, если нулевое значение — условие ложно.

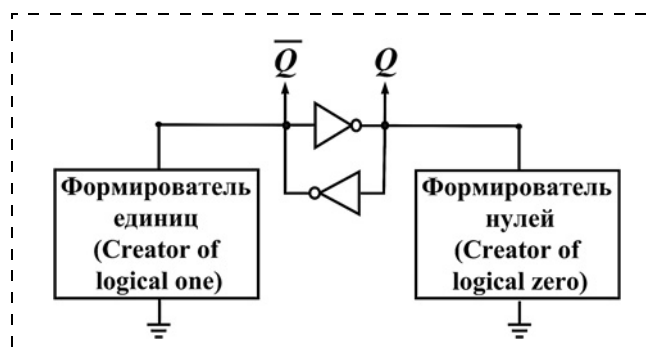


Рис. 2. Способ формирования выходного сигнала на n -МОП-транзисторах

Fig. 2. Generating of an output signal on the n -MOS transistors

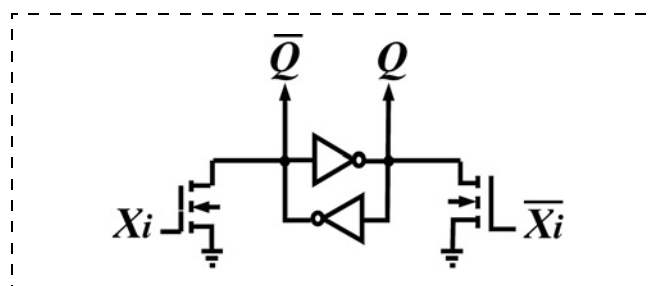


Рис. 3. Схема для запоминания одиночных сигналов

Fig. 3. Scheme for storing of single signals

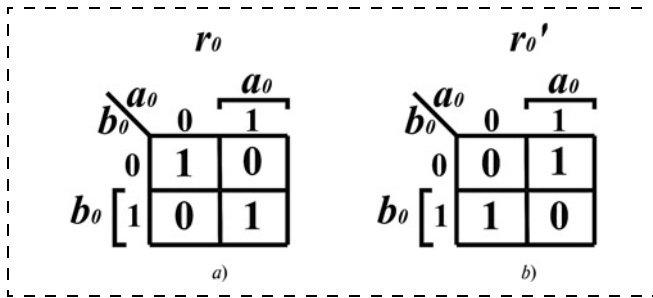


Рис. 4. Карта минтермов для сигнала r_0 (a) и инвертированная карта (b)

Fig. 4. Map of minterms for signal r_0 (a) and the inverted map (b)

Для функции, проводящей сравнение разрядов на "равно", справедливо следующее выражение [7]:

$$r_0 = \overline{a_0 \oplus b_0} = a_0 \cdot b_0 + \bar{a}_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (1)$$

Если все разряды одного слова будут равны соответствующим разрядам другого слова, то слова равны. Выражение, являющееся признаком равенства слов, имеет вид:

$$F_{A=B} = r_{n-1} \cdot r_{n-2} \cdot \dots \cdot r_0. \quad (2)$$

Рассмотрим синтез одноразрядной схемы сравнения на "равно", состоящей из формирователей логического "0" и "1" на n -МОП-транзисторах.

Для получения подсхемы формирования логических нулей составим карту минтермов для выходного сигнала r_0 исходя из выражения (1) (рис. 4, a).

Затем значения минтермов в каждой клетке заменим на противоположные (рис. 4, b). Из карты минтермов, изображенной на рис. 4, b, запишем сигнал r_0' в виде суммы минтермов:

$$r_0' = a_0 \cdot \bar{b}_0 + \bar{a}_0 \cdot b_0. \quad (3)$$

Формирователи единиц и нулей могут быть реализованы непосредственно по формулам (1), (3), по следующим правилам [6]:

- логическое умножение — в виде последовательно соединенных МОП-транзисторов (или параллельных структур из МОП-транзисторов);
- логическое сложение — в виде параллельно соединенных МОП-транзисторов (или последовательных структур из МОП-транзисторов).

Применив эти правила и используя формулы (1), (3), синтезируем схему, выполняющую функцию сравнения на "равно" в асинхронном двухпроводном компараторе для одного разряда (рис. 5, a). На рис. 5, b показано ее условное обозначение.

Результаты моделирования работы данного функционального блока представлены на рис. 6.

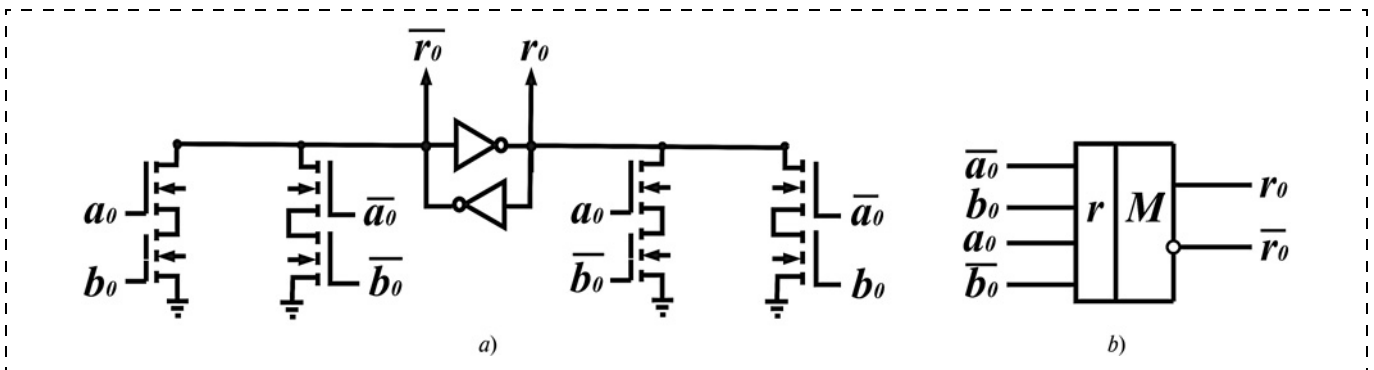


Рис. 5. Синтезированная схема операции сравнения на "равно" в асинхронном двухпроводном компараторе для одного разряда (a) и ее условное обозначение (b)

Fig. 5. Flow diagram of comparison on "equal" in the asynchronous two-conductor comparator for one bit (a) and its symbol (b)

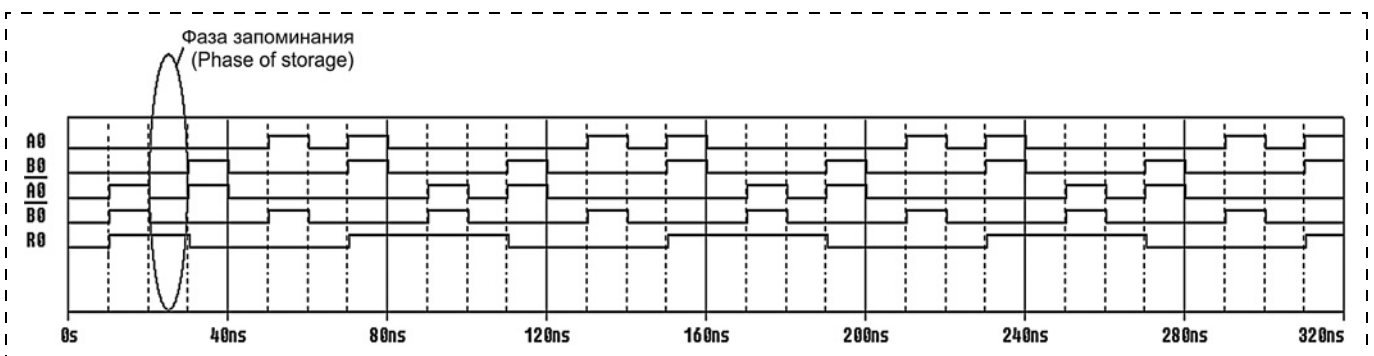


Рис. 6. Работа функционального блока одноразрядного асинхронного компаратора с памятью, выполняющего операцию сравнения на "равно"

Fig. 6. Operation of unit of the one-bit asynchronous comparator with memory, performing the comparison operation on "equal"

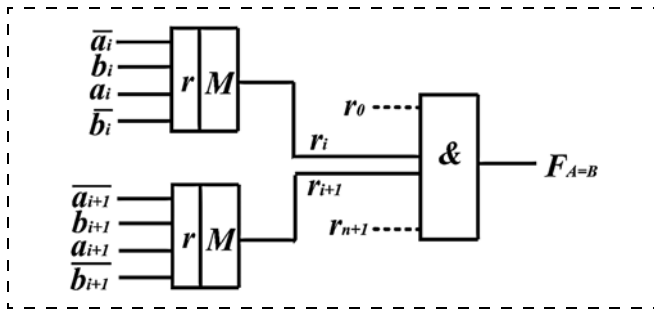


Рис. 7. Синтезированная схема, выполняющая функцию сравнения $F_{A=B}$ в запоминающем асинхронном компараторе для многоразрядного слова

Fig. 7. Synthesized circuit, performing the comparison function $F_{A=B}$ in the memorizing asynchronous comparator for multi-bit word

Выходной сигнал на рис. 6 изменяется в полном соответствии с формулой (1) и имеет функцию запоминания при обнулении входных сигналов.

В многоразрядном слове для создания схемы, выполняющей функцию сравнения $F_{A=B}$, выход каждого разряда на "равно" необходимо соединить элементом "И" (рис. 7).

Значение функции $F_{A=B}$ для функционального блока двухразрядного компаратора определяется выражением

$$F_{A=B} = (a_0 \cdot b_0 + \bar{a}_0 \cdot \bar{b}_0) \cdot (a_1 \cdot b_1 + \bar{a}_1 \cdot \bar{b}_1). \quad (4)$$

На рис. 8 показаны результаты моделирования работы функционального блока двухразрядного асинхронного компаратора, выполняющего операцию сравнения на "равно", реализованного согласно структурной схеме рис. 7.

График выходной функции $F_{A=B}$ соответствует выражению (4). Сигналы "логического 0", приходящие на все входы схемы (прямые и инверсные) одновременно, призваны показать, что в это время происходит запоминание предыдущих состояний на выходах схемы.

Синтез схемы, выполняющей операцию сравнения $F_{A>B}$ в асинхронном двухпроводном компараторе

Операция на "больше" для одного разряда описывается выражением:

$$F_{A>B} = a_i \cdot \bar{b}_i. \quad (5)$$

Построим с помощью рассматриваемого метода синтеза асинхронных схем с памятью на основе выражения (5) схему сравнения на "больше" в асинхронном компараторе для одного разряда. Это построение выполним по тем же правилам, что и для синтеза схемы операции сравнения на "равно". Синтезированная схема и ее условное обозначение приведены на рис. 9.

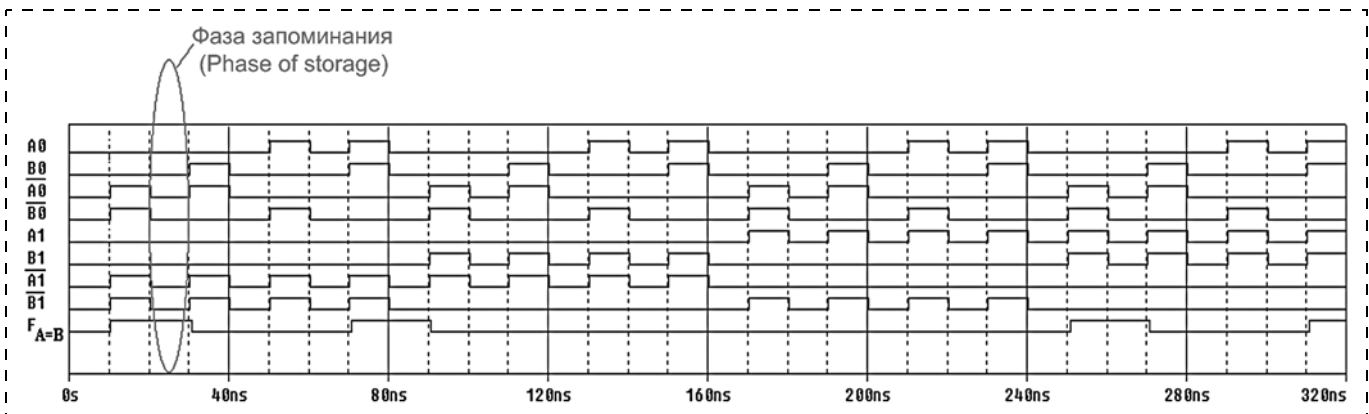


Рис. 8. Работа функционального блока двухразрядного асинхронного компаратора, выполняющего операцию сравнения на "равно"

Fig. 8. Operation of unit of the two-bit asynchronous comparator, performing the comparison operation on "equal"

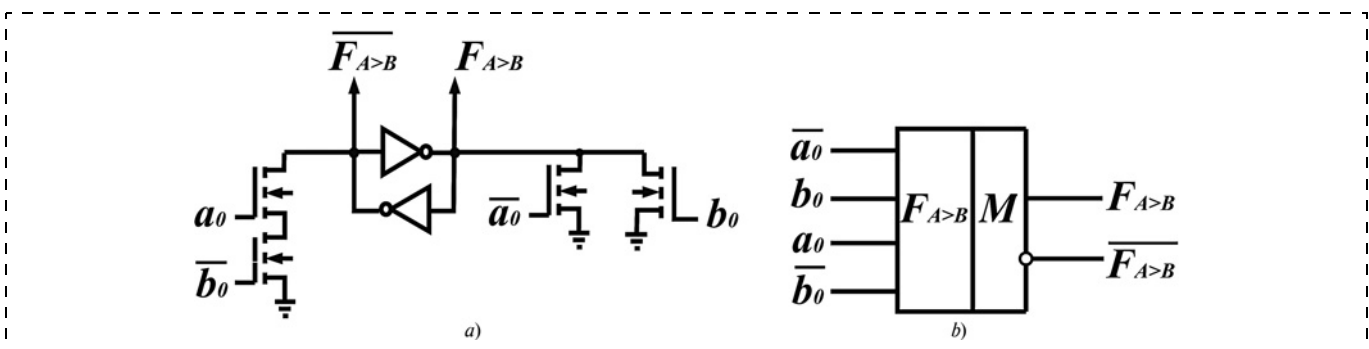


Рис. 9. Синтезированная схема на "больше" асинхронного компаратора для одного разряда (a) и ее условное обозначение (b)

Fig. 9. Synthesized circuit on "more" of the asynchronous comparator for a single bit (a) and its symbol (b)

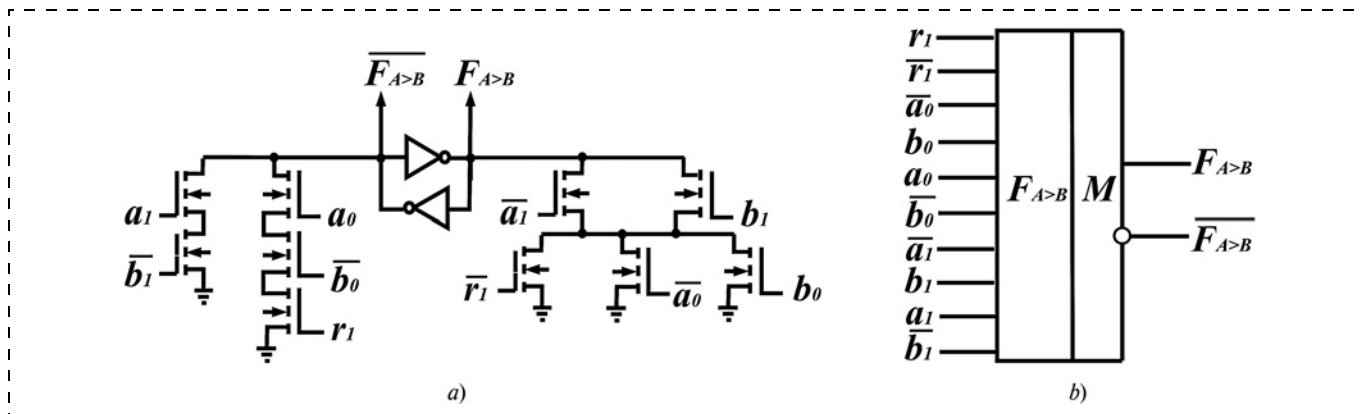


Рис. 10. Синтезированная схема для сравнения на "больше" в асинхронном компараторе для двухразрядного слова (а) и ее условное обозначение (б)

Fig. 10. Synthesized circuit for comparison on "more" of the asynchronous comparator for two-bit word (a) and its symbol (b)

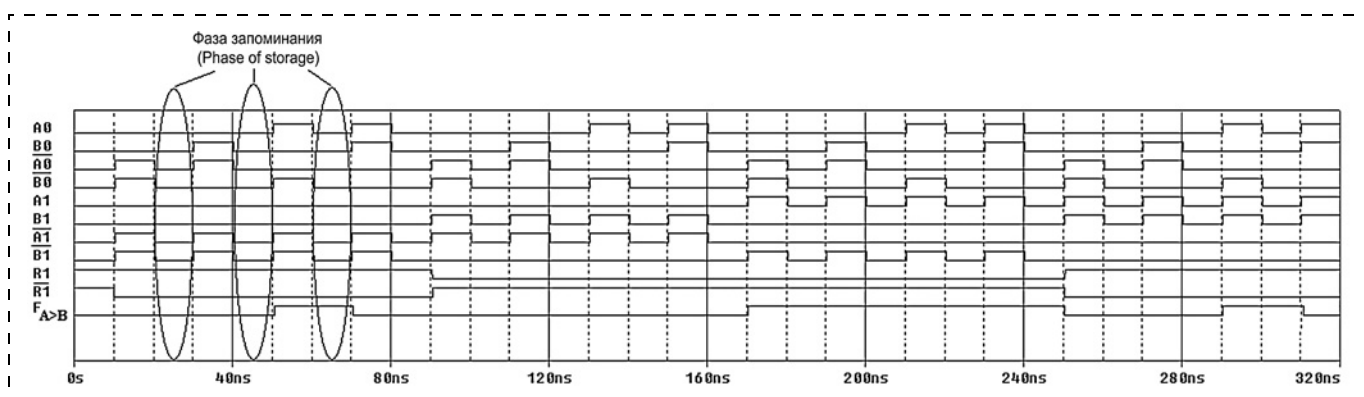


Рис. 11. Работа функционального блока двухразрядного асинхронного компаратора, выполняющего операцию сравнения $F_{A>B}$

Fig. 11. Operation of unit of the two-bit asynchronous comparator, performing the comparison operation $F_{A>B}$

Для слова, состоящего из двух разрядов, выражение для сравнения на "больше" примет вид

$$F_{A>B} = a_1 \cdot \bar{b}_1 + r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (6)$$

Основываясь на выражении (6), можно построить схему сравнения на "больше" (рис. 10).

Для проверки правильности работы двухразрядного функционального блока асинхронного компаратора, выполняющего операцию сравнения $F_{A>B}$, представим результаты его моделирования (рис. 11).

На графике функция $R1$ вычислялась по формуле $r_1 = a_1 \cdot b_1 + \bar{a}_1 \cdot \bar{b}_1$. Из рис. 11 видно, что сигнал $F_{A>B}$ изменяется в соответствии с формулой (6), а приход сигнала "логический 0" на все входы схемы показывает, что рассматриваемая схема обладает свойством запоминания.

Отметим, что функция r_1 старшего разряда нужна для операции сравнения на "равно" и на "больше", она может быть взята в готовом виде. Ведь если $a_1 = b_1$ у старшего разряда, то результат еще неизвестен и требуется анализ следующего (младшего) разряда по тому же алгоритму.

Вообще, для общего случая n -разрядных слов имеем [7]

$$F_{A>B} = a_{n-1} \cdot \bar{b}_{n-1} + r_{n-1} \cdot a_{n-2} \cdot \bar{b}_{n-2} \dots \dots + r_{n-1} \cdot r_{n-2} \dots \dots r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (7)$$

Схема синтезированного функционального блока, выполняющая операцию $F_{A>B}$, имеет для одноразрядного слова четыре входа, для двухразрядного — 10 входов. При увеличении разрядности слов (от трех разрядов и выше) число входов в рассматриваемом блоке неминуемо будет расти. Это приведет к избыточному числу n -МОП-транзисторов в нижней части схемы и, естественно, к ухудшению ее параметров (быстродействие, потребляемая мощность). Поэтому целесообразно использовать схему для двухразрядного слова, выполняющую сравнение на "больше", как элементарный функциональный блок в структуре многоразрядной схемы операции сравнения $F_{A>B}$. Рассмотрим построение функционального блока восьмиразрядного асинхронного компаратора, выполняющего операцию сравнения $F_{A>B}$.

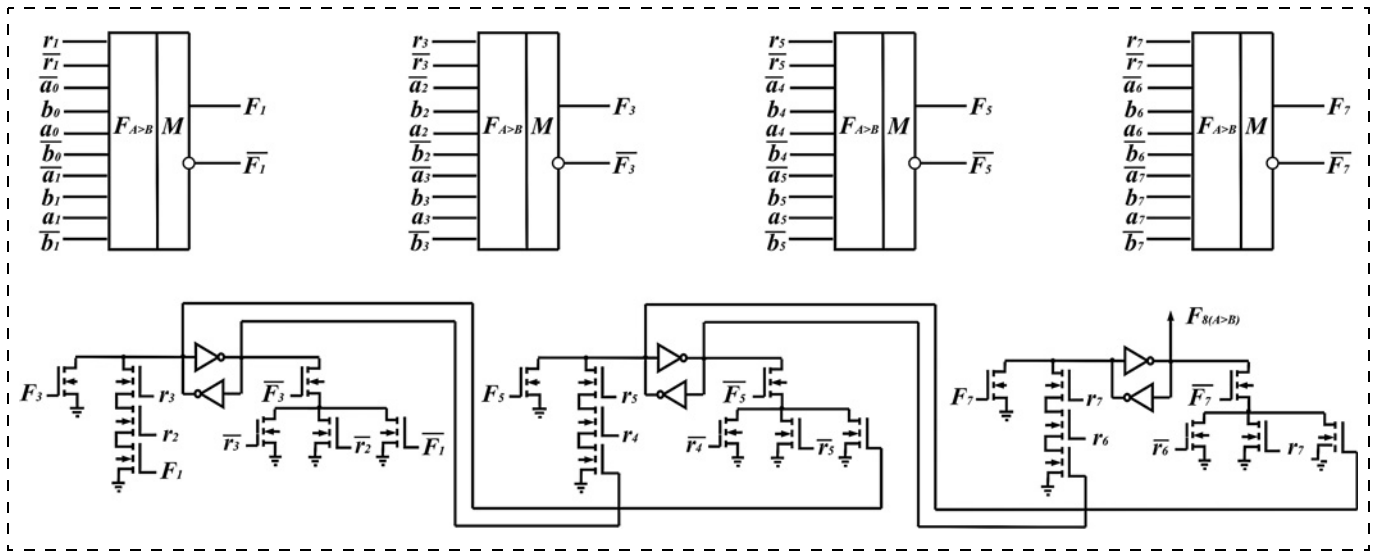


Рис. 12. Синтезированная схема, выполняющая функцию сравнения $F_{A>B}$ в асинхронном компараторе для восьмиразрядного слова
 Fig. 12. Synthesized circuit, performing the comparison function $F_{A>B}$ in an asynchronous comparator for eight-bit word

Результат сравнения на "больше" для восьми разрядов определяется из выражения (7) при $n = 8$:

$$F_{(8)A>B} = a_7 \cdot \bar{b}_7 + r_7 \cdot a_6 \cdot \bar{b}_6 + r_7 \cdot r_6 \cdot a_5 \cdot \bar{b}_5 + \dots \\ \dots + r_7 \cdot r_6 \cdot r_5 \cdot r_4 \cdot r_3 \cdot r_2 \cdot r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (8)$$

Далее сгруппируем в выражении (8) слагаемые таким образом, чтобы можно было вынести общий множитель $r_7 r_6$ за общую фигурную скобку. Внутри фигурной скобки, вынеся множители $r_5 r_4$ и $r_3 r_2$ за пределы скобок, получим

$$F_{(8)A>B} = (a_7 \cdot \bar{b}_7 + r_7 \cdot a_6 \cdot \bar{b}_6) + r_7 \cdot r_6 \cdot \{(a_5 \cdot \bar{b}_5 + \\ + r_5 \cdot a_4 \cdot \bar{b}_4) + r_5 \cdot r_4 \cdot [(a_3 \cdot \bar{b}_3 + r_3 \cdot a_2 \cdot \bar{b}_2) + \\ + r_3 \cdot r_2 \cdot (a_1 \cdot \bar{b}_1 + r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0)]\}. \quad (9)$$

Обозначив выражения в (9) $a_7 \cdot \bar{b}_7 + r_7 \cdot a_6 \cdot \bar{b}_6 = F_7$, $a_5 \cdot \bar{b}_5 + r_5 \cdot a_4 \cdot \bar{b}_4 = F_5$, $a_3 \cdot \bar{b}_3 + r_3 \cdot a_2 \cdot \bar{b}_2 = F_3$, $a_1 \cdot \bar{b}_1 + r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0 = F_1$, получим

$$F_{(8)A>B} = F_7 + r_7 \cdot r_6 \cdot [F_5 + r_5 \cdot r_4 \cdot (F_3 + r_3 \cdot r_2 \cdot F_1)]. \quad (10)$$

Выражения F_7 , F_5 , F_3 и F_1 реализуются в виде элементарных функциональных блоков, о которых говорилось выше, для операции сравнения $F_{A>B}$ двухразрядных слов. Синтезированная на основе выражения (10) схема приведена на рис. 12.

Полная схема синтезированного двухразрядного асинхронного двухпроводного компаратора

Собрав воедино рассмотренные выше схемы, получим полную схему синтезированного двухразрядного асинхронного компаратора (рис. 13).

Операция сравнения на "меньше" выражается через основные отношения $F_{A=B}$ и $F_{A>B}$ следующим образом:

$$F_{A<B} = \bar{F}_{A=B} \cdot \bar{F}_{A>B}. \quad (11)$$

Как видно из рис. 13, схема асинхронного компаратора для двухразрядных слов имеет двухпроводную реализацию и запоминающие элементы, благодаря которым текущее значение выходного сигнала сохраняется до прихода следующего. К тому же рассматриваемый компаратор состоит лишь из 50 транзисторов. Для сравнения, схема комби-

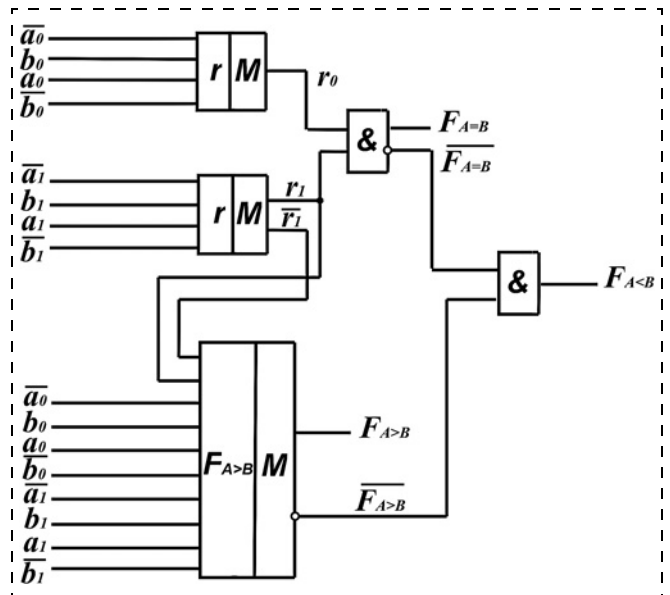


Рис. 13. Синтезированный асинхронный компаратор для двухразрядных слов, обладающий способностью сохранять текущее значение данных
 Fig. 13. Synthesized asynchronous comparator for two-bit words, having the ability to save the current value of the data

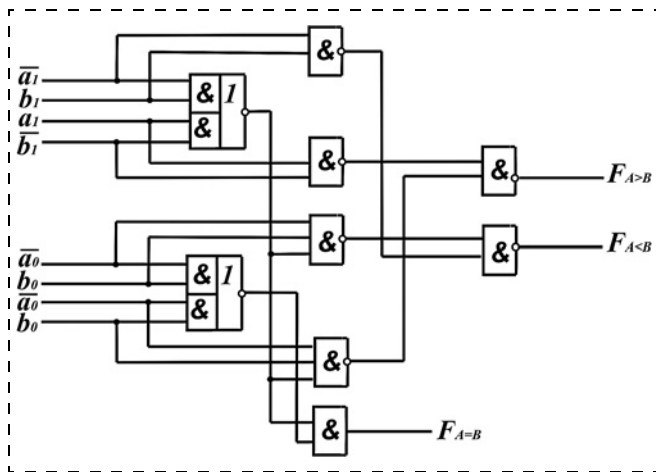


Рис. 14. Комбинационный компаратор для двухразрядных слов
Fig. 14. Combination comparator for two-bit words

национного компаратора [7] для двухразрядных слов с парафазными сигналами состоит уже из 66 транзисторов и не обладает свойством запоминания текущего значения (рис. 14).

Для исследования компараторов, показанных на рис. 13 и 14, была выбрана программа OrCad 16.6 и SPICE-моделирование. Для моделирования КМОП-транзисторов использовали модель BSIM3 [8, 9], технология 180 нм. Интервал поступления сигналов на вход выбран равным 10 нс. Топологические размеры МОП-транзисторов в схемах выбраны такими, чтобы входные транзисторы могли переключать защелку с минимальным временем задержки, не потребляя при этом чрезмерно больших мощностей. Для этого транзисторы, на которые подаются входные сигналы, имеют ширину затвора 2,0 и 1,2 мкм (для p - и n -канальных транзисторов соответственно). Транзисторы защелки имеют ширину затвора 0,8 мкм (p -канальный транзистор) и 0,45 мкм (n -канальный транзистор). Исследование асинхронного компаратора, обладающего способностью сохранять текущее значение данных, для двухразрядного слова в режиме нулевого спейсера проводили в диапазоне 320 нс при $E_{пит} = 5$ В. Для него были получены следующие параметры: рассеиваемая мощность $P_{ср} = 0,042$ мВт, задержка распространения $\tau_{з.р} = 0,5$ нс, число транзисторов в схеме $N = 50$ шт, энерготопологический критерий $L = 1,05$ пДж · шт.

Все термы схемы асинхронного компаратора с возможностью сохранять текущее значение определены, поэтому она может быть использована как комбинационная схема. Исследование комбинационного компаратора и синтезированного асинхронного в режиме комбинационной схемы (без использования обнуления) проводили при тех же условиях.

Результаты моделирования показали, что при $E_{пит} = 5$ В, обе схемы имеют одинаковый энерго-

топологический критерий ($L = 1,81$ пДж · шт). Асинхронный компаратор имеет меньшее число транзисторов (на 24,2 % меньше). Задержка распространения этих схем одинакова ($\tau_{з.р} = 0,5$ нс). И лишь рассеиваемая мощность асинхронного синтезированного компаратора в режиме работы комбинационной схемы (0,074 мВт) больше рассеиваемой мощности комбинационного компаратора (0,061 мВт) на 17,6 %.

Заключение

Рассмотрен метод синтеза функциональных блоков самосинхронных схем, объединяющих в себе комбинационную функцию и регистр хранения данных. Показаны особенности построения функциональных блоков компаратора, выполняющего операции сравнения на "равно", "больше" и "меньше" в многоразрядном слове. Замечено, что синтезированный асинхронный компаратор с возможностью запоминания может работать в режиме комбинационной функции, так как все термы его схемы определены. Результаты моделирования работы функциональных блоков схем подтверждают правильность предложенной методики синтеза. Синтезированная схема исследована также в режиме комбинационной схемы и сравнена с аналогом — комбинационным компаратором. Результаты исследования получены с использованием оборудования Центра коллективного пользования и Научно-образовательного центра "Нанотехнологии" Института нанотехнологий, электроники и приборостроения Южного федерального университета (г. Таганрог).

Список литературы

1. Плеханов Л. П. Основы самосинхронных электронных схем. М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2013. 208 с.
2. Бумагин А., Гондарь А., Куляс М., Руткевич А., Стещенко В., Тайлеб М., Шишкин Г. Самосинхронные схемы. Принципы построения и элементная база // Компоненты и технологии. 2009. № 10. С. 103—106.
3. Плеханов Л. П. Синтез комбинационных самосинхронных электронных схем // Системы и средства информатики. Вып. 14. М.: Наука, 2004. С. 292—304.
4. Степченко Ю. А., Петрухин В. С., Дьяченко Ю. Г. Опыт разработки самосинхронного ядра микроконтроллера на базовом матричном кристалле // Проблемы разработки перспективных микроэлектронных систем — 2005. Сб. науч. трудов / под общ. ред. А. Л. Стемпковского. М.: ИППМ РАН, 2005. С. 235—242.
5. Fant K. M., Brandt S. A. NULL Convention Logic / Theus Logic Inc., USA, 1997. 35 с.
6. Рабаи Ж. М., Чандракасан А., Николич Б. Цифровые интегральные схемы. Методология проектирования. 2-е изд. М.: Вильямс, 2007. 912 с.
7. Угрюмов Е. Цифровая схемотехника. СПб.: БХВ — Санкт-Петербург, 2000. 528 с.
8. Cheng Y., Jeng M.-C., Hu C. MOSFET modeling & BSIM3 user's guide. Kluwer Academic Publishers, 1999. 461 p.
9. Cheng Y., Jeng M.-C., Hu C. BSIM3 version 3.1 User's Manual. Memorandum № UCB/ERL M97/2, Berkeley, University of California, 1992.

Method for Synthesis of the Storage Elements for the Self-Synchronizing Circuits

The author presents the method for synthesis of the functional units of the self-synchronizing circuits, integrating the combinational function and storage register. The necessary function is formed at the output of such functional units by means of two circuits on n -MOS transistors, located in the left and right planes in relation to the memory element. The rules of synthesis of the functional units of the self-synchronizing circuits are presented on the example of implementation of a multibit comparison element. The validity of the proposed method of synthesis was proved by the simulation synthesis schemes within OrCAD 16,6 program.

Keywords: self-synchronizing circuit, asynchronous register, combinational function, Karnaugh map, minterm, memory element, comparison element, modeling

Introduction

Self-timed circuits (ST-circuits) are gaining attention of scientists. This is caused by the to the following advantages, which they possess [1]:

- the absence of synchronization system, which branching increases at the integration of the circuit, which reduces the cost of implementation of the apparatus;
- significantly increase in the speed of the circuit in comparison with synchronous analogues, which is limited by the operating conditions and physical parameters;
- increased service life due to resistance to aging compared with synchronous analogues; — self-testing and self-checking of such circuits;
- termination of work at the time of element failure that excludes the issuance of erroneous data, and also makes it possible to locate the location of the fault, thereby reducing the time to fix the problem and restart the system;
- significantly lower power dissipation and uniformity of current consumption as compared with synchronous analogues.

Construction of self-timed circuit

Self-timed circuit (ST-circuit) [2] may be composed of blocks as it shown in fig. 1. The ST-circuit includes: a memory element (asynchronous register), which performs data storage at processing time, the combinational function that performs the processing of data, the indicator of the transition process, which generates a signal, the duration of which is equal to the duration of the transition process, the control circuit, giving the signal "Start" to initiate the process, and the block for permission of data transmission. With starting of ST-circuit ("Start" is a logical "1"), the data transmission permission unit transmits data to the asynchronous register which stores the input information. Starting of the process sets the signal "Start" to logic "0", resulting in all the signals at the output of the data transmission permission becomes zero. The stored values of the signals in asynchronous register are processed by the function of combination. After the transient process, the signal "Start" becomes a logical "1" and the processing of the next portion of the signal begins. The circuit does not

require external synchronization signal and synchronizes by the internal signal of the end of the transition process. The theory of the synthesis of the combinational function of indicator is widely presented [3–5]. The permission unit and control circuit can be easily implemented on the elements of "logical AND". Asynchronous register cannot be implemented on the logic DCVSL [6], since the reset of the input signals turns off the loads, while the output signal in the trigger will not be remembered, but to break down. Below we consider the synthesis of the asynchronous memory registers.

Method to form the memorized signal

Consider the block diagram in fig. 2. The circuit is symmetrical and includes two groups of n -MOS transistors. Left their group forms the Q units at output, the right — forms the zeros. Between themselves they connected by two inverters, installed anti-parallelly, i.e. as a latch. When the "logical 0" is applied the inputs of the circuit, the output signal is not changed, it mean that it is remembered. This feature of the mentioned circuit allows to use it as an asynchronous register.

The single signals may be stored with such a scheme (fig. 3). But at this construction ST — circuit appears cumbersome. It is more profitable to "embed" the memory function in the input stages of the combination unit. As an example, consider a device of asynchronous comparator with the memory element in the input circuits of the combination unit.

Synthesis of a circuit performing comparison operation on the "equal" in the asynchronous two-conductor comparator

The comparators are the comparing devices that define the relationship between the two words. The key relationships through which we can express the others are "equal" and "more" [7]. The following criteria valid for comparator: if the comparison function takes a single value, the condition is true, if it takes the value zero — the condition is false. For the function, conducting comparison of bits on "equal" we have the following expression [7]:

$$r_0 = \overline{a_0 \oplus b_0} = a_0 \cdot b_0 + \bar{a}_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (1)$$

If all the bits of the first word are equal to the corresponding bits of another word, the words are the same. The expression, which is a sign of equality of the words is as follows:

$$F_{A=B} = r_{n-1} \cdot r_{n-2} \cdot \dots \cdot r_0. \quad (2)$$

Consider the synthesis of single-bit comparison circuits to "equal", consisting of generators of logical "0" and "1" on the n -MOS transistors.

To obtain the subcircuit to form the logical zeros we create a minterm map of the output signal r_0 from the expression (1) (fig. 4, *a*). Then the values of minterms in each cell will replace by the opposite (fig. 4, *b*). From the image of minterm map write signal r'_0 as the sum of minterms:

$$r'_0 = a_0 \cdot \bar{b}_0 + \bar{a}_0 \cdot b_0. \quad (3)$$

The formers of unities and zeros can be implemented directly by the formulas (1), (3) according to the following rules [6]:

— logical multiplication — in the form of serially-connected MOS transistors (or parallel structures of MOS transistors);

— logical addition — in the form of MOS transistors connected in parallel (or serial structures of MOS transistors).

Applying these rules and using the formula (1), (3), we synthesize the circuit serving as a comparison function on "equal" in the asynchronous two-conductor comparator for one category (fig. 5, *a*). Fig. 5, *b* shows its symbolic notation. The simulation results of the work of the functional block are shown in fig. 6. The output signal is changed in compliance with the formula (1) and has a memory function at zeroing of input signals.

In the multi-bit word, the output of each category on "equal" must be connected to an element "AND" (fig. 7) to create a circuit that performs a comparison function $F_{A=B}$. The value of function for $F_{A=B}$ for function block of the two-conductor comparator is given by the expression:

$$F_{A=B} = (a_0 \cdot b_0 + \bar{a}_0 \cdot \bar{b}_0) \cdot (a_1 \cdot b_1 + \bar{a}_1 \cdot \bar{b}_1). \quad (4)$$

Fig. 8 shows the simulating results of operation of the functional unit of two-conductor asynchronous comparator, which performs the comparison operation on "equal", implemented in accordance with the scheme in fig. 7.

The graph of the output function $F_{A=B}$ corresponds to the expression (4). The signals of the "logical 0" coming to the inputs of the circuit (direct and inverse) at the same time, designed to show that at this time there remembering of the previous state occurs at the outputs.

Synthesis of the circuit performing comparison operation $F_{A>B}$ in the two-conductor asynchronous comparator

Operation on "more" for one bit is described by the expression:

$$F_{A>B} = a_i \cdot \bar{b}_i. \quad (5)$$

Let's build the comparison circuit on "more" in the asynchronous comparator for a single bit with the help of the method of synthesis of asynchronous circuits with the memory based on the expression (5). The construction will perform by the same rules as for the synthesis of the circuit for operation of comparison on "equal". The circuit and its symbol are shown in fig. 9.

For a word consisting of two digits, the expression for comparison on "more" becomes:

$$F_{A>B} = a_1 \cdot \bar{b}_1 + r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (6)$$

Basing on the expression (6), we can construct a circuit for comparison on "more" (fig. 10).

To verify the correct operation of two-bit asynchronous comparator function block that performs the comparison operation $F_{A>B}$, let us present the results of its simulation (fig. 11). The function $R1$ on the graph was calculated according to the formula $r_1 = a_1 \cdot b_1 + \bar{a}_1 \cdot \bar{b}_1$. It can be seen that the signal $F_{A>B}$ is changed in accordance with the formula (6), and the arrival of signal of the "logic 0" on all inputs of the circuit shows that this circuit has the memorization feature.

We can note, that the function r_1 of the high-order bit is needed for comparison operations to "equal" and "more"; it can be taken out-of-the-box. If $a_1 = b_1$ at the high-order bit, the result is still unknown and it requires an analysis of the next (younger) bit on the same algorithm. Generally, for the general case of n -bit words we have [7]:

$$F_{A>B} = a_{n-1} \cdot \bar{b}_{n-1} + r_{n-1} \cdot a_{n-2} \cdot \bar{b}_{n-2} \dots \dots + r_{n-1} \cdot r_{n-2} \dots \cdot r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (7)$$

The circuit of the synthesized function block that performs the operation $F_{A>B}$ has for one-bit word the four inputs, for the two-digit — 10 inputs. At increasing of the word bits (three bits and above), the number of inputs in this block will inevitably grow. This will lead to an excessive number of n -MOS transistors in the lower part of the circuit and to deterioration of its parameters (speed, power consumption). Therefore, it is advisable to use the circuit for two-bit word, which performs a comparison on "more" as an elementary function block in the structure of a multi-bit circuit of comparison operation $F_{A>B}$. Consider the construction of a functional block of eight-bits asynchronous comparator performing comparison operation $F_{A>B}$. The result of the comparison on "more" for the eight bits is determined from the expression (7) for $n = 8$:

$$F_{(8)A>B} = a_7 \cdot \bar{b}_7 + r_7 \cdot a_6 \cdot \bar{b}_6 + r_7 \cdot r_6 \cdot a_5 \cdot \bar{b}_5 + \dots \dots + r_7 \cdot r_6 \cdot r_5 \cdot r_4 \cdot r_3 \cdot r_2 \cdot r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0. \quad (8)$$

Next, group the terms in the expression (8), to be able to take out of the curly brackets a common factor

for r_7r_6 . Inside the curly brackets, taken outside the factors r_5r_4 and r_3r_2 the brackets, we get:

$$F_{(8)A>B} = (a_7 \cdot b_7 + r_7 \cdot a_6 \cdot \bar{b}_6) + r_7 \cdot r_6 \cdot \{(a_5 \cdot \bar{b}_5 + r_5 \cdot a_4 \cdot \bar{b}_4) + r_5 \cdot r_4 \cdot [(a_3 \cdot \bar{b}_3 + r_3 \cdot a_2 \cdot \bar{b}_2) + r_3 \cdot r_2 \cdot (a_1 \cdot \bar{b}_1 + r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0)]\}. \quad (9)$$

We denote the expressions in (9) $a_7 \cdot \bar{b}_7 + r_7 \cdot a_6 \cdot \bar{b}_6 = F_7$, $a_5 \cdot \bar{b}_5 + r_5 \cdot a_4 \cdot \bar{b}_4 = F_5$, $a_3 \cdot \bar{b}_3 + r_3 \cdot a_2 \cdot \bar{b}_2 = F_3$, $a_1 \cdot \bar{b}_1 + r_1 \cdot a_0 \cdot \bar{b}_0 = F_1$, we obtain:

$$F_{(8)A>B} = F_7 + r_7 \cdot r_6 \cdot [F_5 + r_5 \cdot r_4 \cdot (F_3 + r_3 \cdot r_2 \cdot F_1)]. \quad (10)$$

F_7 , F_5 , F_3 and F_1 are realized in the form of elementary functional units described above, for comparison operations $F_{A>B}$ for two digit word. The synthesized circuit based on the expression (10) is shown in fig. 12.

Full circuit of the synthesized two-bit asynchronous two-conductor comparator

By bringing together the above circuits, we obtain the full circuit of synthesized two-bit asynchronous comparator (fig. 13).

Operation of comparison on "less" is expressed through relationships $F_{A=B}$ and $F_{A>B}$ as follows:

$$F_{A<B} = \bar{F}_{A=B} \cdot \bar{F}_{A>B}. \quad (11)$$

As can be seen, the circuit for asynchronous comparator for two-digit word has two-wire implementation and the storage elements by which the current value of the output signal becomes saved until the next. The reviewed comparator consists of only 50 transistors. For comparison, the circuit of combination comparator [7] for two-digit words with paraphase signals consists already of 66 transistors and has the feature of storing of the current value (fig. 14).

The software packages OrCad 16.6 and SPICE simulation were selected to investigate the comparator (figs. 13 and 14). The model BSIM3 [8, 9], 180 nm technology was used for modeling of CMOS transistors. The interval of signals at the input was selected to be 10 ns. The topological dimensions of MOS transistors in the circuits were selected such that the input transistors can switch the latch with a minimum delay time without consuming of unconscionable capacities. For this purpose, the transistors, which were supplied with inputs have the gate width of 2,0 and 1,2 μm (for p - and n -channel transistors, respectively). Latch transistors have the width of 0,8 μm (p -channel transistor) and 0,45 μm (n -channel transistor). The study of the asynchronous comparator having the ability to save the current value of the data for the two-bit word in zero spacer mode was held in the range of 320 ns at $E_{\text{sup}} = 5 \text{ V}$. The following parameters were obtained for it: dissipation power $P_{\text{ds}} = 0,042 \text{ mW}$, propagation delay $\tau_{\text{pd}} = 0.5 \text{ ns}$, the number of transistors in the circuit $N = 50$ units, energy-topological criterion $L = 1,05 \text{ pJ} \cdot \text{pcs}$.

All terms of the circuit of the asynchronous comparator with the ability to store the current value were defined, so it can be used as a combinational circuit. The investigation of the combination comparator and the synthesized asynchronous comparator in the mode of combinational circuit (without zeroization) was conducted under the same conditions. The simulation results showed that when $E_{\text{sup}} = 5 \text{ V}$, both circuits have the same energy-topological criterion ($L = 1,81 \text{ pJ} \cdot \text{pcs}$). The asynchronous comparator has fewer transistors (24,2 % less). The propagation delay of the circuit is the same ($\tau_{\text{pd}} = 0,5 \text{ ns}$). Only the power dissipation of the synthesized asynchronous comparator in the mode of combinational circuit (0,074 MW) is greater than the dissipation power of the combination comparator (0,061 MW) by 17,6 %.

Conclusion

The method of synthesis of the functional blocks of self-timed circuits that combine a combinational function and the data storage register was reviewed. The features of construction of the comparator's function blocks performing comparison operations on "equal", "greater than" and "less than" in the multi-bit word were shown. It was noticed that the synthesized asynchronous comparator with the ability to store can work in combination function as all its terms are defined. The simulation results of the functional blocks of the circuit confirm the correctness of the proposed method of synthesis. The synthesized circuit was also studied in the mode of combinational circuit and compared with analogue — combinational comparator.

The results were obtained using the equipment of the Center for Collective Use and the Research and Education Center "Nanotechnologies" of the Institute of Nanotechnologies, Electronics and Instrumentation of the Southern Federal University (Taganrog).

References

1. Plehanov L. P. *Osnovy samosinhronnykh jelektronnykh shem*, Moscow, BINOM, Laboratorija znaniy, 2013, 208 p.
2. Bumagin A., Gondar' A., Kuljas M., Rutkevich A., Steshenko V., Tajleb M., Shishkin G. Samosinhronnyye shemy. Principy postroeniya i jelementnaja baza, *Komponenty i tehnologii*, 2009, no. 10, pp. 103—106.
3. Plehanov L. P. Sintez kombinacionnykh samosinhronnykh jelektronnykh shem, *Sistemy i sredstva informatiki*, Issue 14, Moscow, Nauka, 2004, pp. 292—304.
4. Stepchenkov Ju. A., Petruhin V. S., D'jachenko Ju. G. Opyt razrabotki samosinhronnogo jadra mikrokontrollera na bazovom matrichnom kristalle, *Problemy razrabotki perspektivnykh mikrojelektronnykh sistem — 2005. Sbornik nauchnykh trudov / pod obshh. red. A. L. Stempkovskogo*, M.: IPPM RAN, 2005, pp. 235—242.
5. Fant K. M., Brandt S. A. NULL Convention Logic. The-seus Logic Inc, USA, 1997, 35 p.
6. Rabai Zh. M., Chandrakasan A., Nikolich B. *Cifrovye integral'nye shemy. Metodologija proektirovaniya*, 2-e izd. Moscow, Sankt-Petersburg, Vil'jams, 2007, 912 p.
7. Ugrjumov E. Cifrovaja shemotekhnika, Sankt-Petersburg, BHV-Sankt-Petersburg, 2000, 528 p.
8. Cheng Y., Jeng M.-C., Hu C. *MOSFET modeling & BSIM3 user's guide*, Kluwer Academic Publishers, 1999, 461 p.
9. Cheng Y., Jeng M.-C., Hu C. *BSIM3 version 3.1 User's Manual*, Memorandum № UCB/ERL M97/2, Berkeley, University of California, 1992.

ЭЛЕМЕНТЫ МНСТ Micro- AND NANOSYSTEM TECHNIQUE ELEMENTS

УДК 539.23-022.53

П. А. Александров, д-р физ.-мат. наук, директор Института информационных технологий НРЦ "Курчатовский институт", **В. В. Бударгин**, канд. физ.-мат. наук, ст. науч. сотр., **В. И. Жук**, канд. физ.-мат. наук, вед. науч. сотр., **В. Л. Литвинов**, д-р физ.-мат. наук, вед. науч. сотр., **С. Е. Стельмак**, науч. сотр.
НРЦ "Курчатовский институт", Москва, e-mail: alexandrov_pa@nrcki.ru

СРАВНИТЕЛЬНЫЕ ОЦЕНКИ ОТКАЗОУСТОЙЧИВОСТИ МАЖОРИТАРНО РЕЗЕРВИРОВАННЫХ И ПОКОМПОНЕНТНО ДУБЛИРОВАННЫХ МИКРОСХЕМ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

Поступила в редакцию 23.11.2015

Уточняются оценки отказоустойчивости покомпонентно резервированных микросхем и предлагаются оценки отказоустойчивости k -кратно мажоритарно резервированных микросхем при их облучении. Приводятся оценки отказоустойчивости нерезервированных и покомпонентно дублированных мажоритарных клапанов. Даются сравнительные оценки отказоустойчивости нерезервированной, покомпонентно дублированной и k -кратно мажоритарно резервированной микросхем. Показано, что отказоустойчивость покомпонентно дублированных микросхем оказывается выше отказоустойчивости троированных микросхем.

Ключевые слова: нанoeлектроника, микроэлектроника, отказоустойчивость, отказ, резервирование в электронных системах, дублирование, мажоритарное резервирование, мажоритарные клапаны

Введение

Воздействие радиации на электронные компоненты — это сложный процесс, зависящий от множества параметров. В их число входит тип радиационного воздействия, энергия частиц, материал и технология создания приборов, их размер и многое другое. Поэтому крайне важны методы оценки этого воздействия на отказоустойчивость цифровых микросхем. В наших работах [1–5] был предложен метод оценки отказоустойчивости этих микросхем по их площадям, который можно применить для сравнительной оценки отказоустойчивости микросхем при использовании различных способов резервирования. Этот метод может быть применен и в нанoeлектронике, и в микроэлектронике при различных видах облучения.

В работе [1] нами был развит метод оценки отказоустойчивости облучаемых микросхем "по площадям", рассмотренный в работах [2–5] и примененный для оценки предложенного в этих работах способа покомпонентного дублирования микросхем без использования специальных логических средств для выбора верных сигналов.

В данной работе этот метод применяется для оценки мажоритарного резервирования микросхем, под которым будем понимать k -кратное ($k \geq 3$ — нечетное) постоянное резервирование с использованием мажоритарных клапанов [6–8]. Здесь под k -кратным постоянным резервированием (k -tuple redundancy) понимается резервирование k элементов (компонентов, узлов, модулей) [8].

На основании этого метода здесь даются сравнительные оценки отказоустойчивости k -кратно мажоритарно резервированных микросхем и покомпонентно дублированной микросхемы, построенной способом, предложенным в работах [1–5] и позволяющим автоматически выдавать верный выходной сигнал при отказе одной из двух ячеек в одном дублированном компоненте.

Но сначала уточним сравнительную оценку отказоустойчивости нерезервированной и покомпонентно дублированной микросхем, приведенную в работе [1], с учетом того, что при k -кратном мажоритарном резервировании придется давать оценку отказоустойчивости нерезервированных и дублированных мажоритарных клапанов, содержащих значительно меньше компонентов, чем нерезервированная микросхема.

1. Уточнение сравнительной оценки отказоустойчивости нерезервированной и покомпонентно дублированной микросхем

Модель нерезервированной микросхемы, описанная в работе [1, с. 11], состоит из N ячеек, одинаковых по площади и содержащих по одному нерезервированному компоненту, содержание и функции которого мы не рассматриваем. Отказом этой микросхемы будем считать отказ одной ее ячейки, соответствующий отказу содержащегося в ней компонента. Как и в работе [1] примем, что для этой модели вероятность отказа нерезервированной микросхемы будет

$$P_H \approx \Phi_H \cdot S_H \cdot W \ll 1, \quad (1.1)$$

где Φ_H и S_H — соответственно флюенс и площадь нерезервированной микросхемы; W — вероятность отказа нерезервированной части микросхемы, расположенной на единице площади, при попадании в нее одной частицы (подробнее о величине W и ее вычислении [см. 1, с. 12, 13, формула (1.12)]).

Формула (1.1) выведена в работе [1, с. 11, 12, формула (1.11)] для случая распределения количества повреждений каждой ячейки в микросхеме по закону Пуассона¹. При этом было принято, что отказ микросхемы, содержащей большое число ячеек, имеет место при отказе хотя бы одной ячейки. Это происходит при очень малом числе повреждений в ячейках микросхемы, которое численно равно математическому ожиданию количества повреждений при распределении Пуассона. Поэтому нас интересуют только те значения флюенса, для которых отказ одной ячейки микросхемы состоялся и при которых $P_H \ll 1$. При дальнейшем облучении микросхемы после отказа одной ячейки, количество повреждений в ней накапливается, но они уже не имеют отношения к вероятности состоявшегося первого отказа одной ячейки, т. е. к вероятности P_H .

Рассмотрим теперь вероятность отказа покомпонентно дублированной микросхемы, модель которой описана в работе [1, с. 13, 14]. Эта модель содержит N дублированных компонентов, каждый из которых состоит из двух дублирующих друг друга нерезервированных компонентов, каждый из которых занимает, как и в нерезервированной микросхеме, одну ячейку. Таким образом, эта модель содержит множество $2N$ дублирующих компонентов, занимающих $2N$ одинаковых по размеру ячеек. Отказом дублированной микросхемы считается отказ любой пары соответствующих друг другу ячеек, т. е. пары ячеек, образующих вместе дублированный компонент. Вероятности попадания частиц в

¹ Аналогичный подход с использованием распределения Пуассона к вычислению вероятности повреждений объекта при его облучении используется в других областях, в частности микродозиметрии, при решении подобных задач [10–12].

различные ячейки дублированной микросхемы одинаковы и не зависят друг от друга.

В этой модели множество всех $2N$ ячеек дублированной микросхемы представляется в виде двух непересекающихся между собой подмножеств M_1 и M_2 , содержащих по N ячеек, не объединяющихся между собой в пары, образующие дублированные компоненты. Отказом дублированной микросхемы является отказ любой пары соответствующих друг другу ячеек, одна из которых принадлежит подмножеству M_1 , а другая — подмножеству M_2 .

Вероятность отказа хотя бы одной ячейки в одном из подмножеств M_1 и M_2 за время $t_{\text{отк.д}}$ облучения по аналогии с формулой (1.1) будет

$$P_{\Pi} \approx \Phi_{\text{д}} \cdot S_{\text{д.п}} \cdot W \ll 1, \quad (1.2)$$

где $\Phi_{\text{д}}$ — максимально допустимый флюенс для дублированной микросхемы; $S_{\text{д.п}}$ — площадь гипотетической нерезервированной микросхемы, содержащей N ячеек, равная половине площади дублированной микросхемы; W — вероятность отказа одной ячейки при попадании в нее частицы, указанная в формуле (1.1).

Поскольку площадь ячейки в дублированной микросхеме больше, чем в нерезервированной микросхеме, то примем, что

$$S_{\text{д.п}} = b \cdot S_H, \quad (1.3)$$

где S_H — площадь нерезервированной микросхемы; $b \geq 1$ — коэффициент, показывающий во сколько раз площадь дублируемого компонента превышает площадь нерезервированного компонента; $b = 1$, когда дублируемый компонент является транзистором, и $b > 1$, когда дублируемый компонент представляет собой логический элемент; в последнем случае значение коэффициента b зависит от числа входов логического элемента, его схемы и резервирования входящих в него компонентов.

Величина P_{Π}^2 — это вероятность произведения двух независимых событий, одно из которых состоит в отказе хотя бы одной ячейки в подмножестве M_1 , а другое — в отказе хотя бы одной ячейки в подмножестве M_2 . При этом случаи попадания частиц в одну и ту же ячейку каждого из подмножеств M_1 и M_2 для интересующих нас максимально допустимых флюенсов $\Phi_{\text{д}}$ нет необходимости рассматривать и учитывать.

Число случаев попадания двух частиц в один компонент дублированной микросхемы, состоящий из двух ячеек, находящихся в разных подмножествах M_1 и M_2 , будет равно N — числу таких компонентов в дублированной микросхеме.

Число случаев попадания двух частиц в разные компоненты дублированной микросхемы, т. е. число случаев, когда одна из этих частиц попадает в один компонент микросхемы, а другая — в другой

ее компонент, будет равно C_N^2 — числу сочетаний из N элементов по 2:

$$C_N^2 = N!/[2! \cdot (N-2)!]. \quad (1.4)$$

Тогда общее число случаев попадания с равной вероятностью двух частиц (первой и второй) в любые ячейки дублированной микросхемы будет

$$G = N + C_N^2. \quad (1.5)$$

Относительная вероятность того, что с вероятностью P_1^2 откажут две ячейки одного дублированного компонента, расположенные в подмножествах M_1 и M_2 , будет

$$H = N/G. \quad (1.6)$$

Подставив (1.5) в (1.6) и разделив числитель и знаменатель на N , получим:

$$H = 1/(1 + C_N^2/N). \quad (1.7)$$

Подставим теперь (1.4) в (1.7):

$$H = 1/\{1 + N!/[2! \cdot (N-2)!] \cdot 1/N\}, \quad (1.8)$$

откуда после преобразований получим

$$H = 1/(1 + 0,5N). \quad (1.9)$$

При $N \gg 2$ из (1.9) получим:

$$H \approx 1/0,5N, \quad (1.10)$$

что вдвое меньше, чем относительная вероятность $1/N$, использованная при вычислении вероятности P_2 отказа дублированной микросхемы в работе [1], формула (2.7)].

Вероятность отказа покомпонентно дублированной микросхемы представим в виде:

$$P_2 = P_{\Pi}^2 \cdot H. \quad (1.11)$$

Для современных микросхем всегда $N \gg 2$. При выполнении этого условия подставив (1.10) в (1.11), получим

$$P_2 = P_{\Pi}^2/0,5N. \quad (1.12)$$

Однако для отдельных узлов микросхемы, например для мажоритарного клапана, неравенство $N \gg 2$ может не соблюдаться. Для такого случая получим

$$P_2 = P_{\Pi}^2/(1 + 0,5N). \quad (1.13)$$

Поскольку $P_{\Pi} \ll 1$, то при $N \gg 2$

$$P_2 \ll 1/0,5N, \quad (1.14)$$

А в случае несоблюдения неравенства $N \gg 2$

$$P_2 \ll 1/(1 + 0,5N). \quad (1.15)$$

Проиллюстрируем полученные соотношения численным примером. При $N = 10^{12}$ и $P_{\Pi} = 10^{-3}$ из (1.12) получим $P_2 = 2 \cdot 10^{-18}$.

Оценим уменьшение вероятности отказа покомпонентно дублированной микросхемы по сравнению с вероятностью нерезервированной микро-

схемы с помощью показателя α_{H2} изменения отказоустойчивости:

$$\alpha_{H2} = P_{\Pi}/P_2, \quad (1.16)$$

где все величины определены выше.

Подставив полученное значение P_2 и принятое приближенное значение $P_{\Pi} \approx 10^{-3}$ в (1.16), получим $\alpha_{H2} \approx 0,5 \cdot 10^{15}$. При $N = 10^8$ и $P_{\Pi} \approx 10^{-2}$ получим $\alpha_{H2} \approx 0,5 \cdot 10^{10}$. Следовательно, отказоустойчивость покомпонентно дублированной микросхемы много выше, чем у нерезервированной микросхемы.

Такие большие значения показателя α_{H2} , кажущиеся нереальными, обусловлены тем, что формула (1.12) выведена на основе весьма упрощенной модели отказа микросхемы. Но она иллюстрирует значительное уменьшение вероятности отказа дублированной микросхемы по сравнению с нерезервированной микросхемой.

2. Структура k -кратно резервированной микросхемы с мажоритарными клапанами

Перейдем к рассмотрению мажоритарно резервированных микросхем и попробуем представить все многообразие их структур в виде обобщенной структуры, чтобы затем на ее основе в разд. 3 предложить расчетную модель и оценку отказоустойчивости этих микросхем.

2.1. Общее описание структуры мажоритарно резервированной микросхемы

В общем случае мажоритарно резервированная микросхема может содержать неодинаковые k -кратно резервированные узлы, выполняющие разные функции. Однако для упрощения будем считать, что k -кратно мажоритарно резервированная микросхема содержит U_k одинаковых k -кратно резервированных узлов. Каждый такой узел 1 содержит k -кратный мажоритарный клапан 2 и установленные на его входах k одинаковых контролируемых логических блоков 3, резервирующих друг друга (рис. 1). Будем считать, что мажоритарный клапан

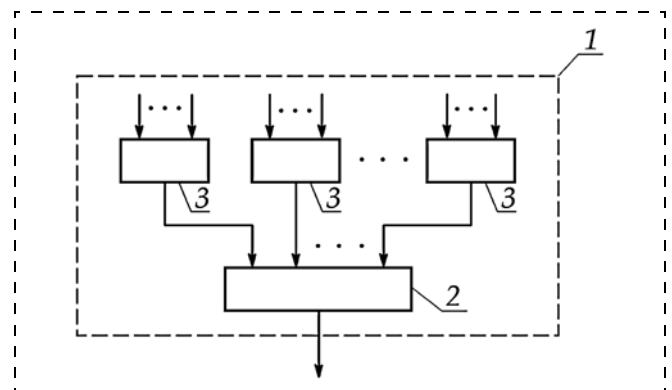


Рис. 1. Схема k -кратно резервируемого узла
Fig. 1. Circuit of a k -fold reserved node

и контролируемые логические блоки состоят из одинаковых элементарных компонентов, в качестве которых могут выступать либо логические элементы, либо содержащиеся в них транзисторы. Общее число элементарных компонентов (в дальнейшем просто — компонентов) во всех логических блоках, содержащихся во всех узлах k -кратно резервированной микросхемы будет:

$$N_k = U_k \cdot k \cdot l_k, \quad (2.1)$$

где l_k — число компонентов в одном логическом блоке при k -кратном резервировании; остальные величины определены выше.

Число компонентов в нерезервированной микросхеме будет

$$N = U_k \cdot l_k. \quad (2.2)$$

Из (2.1) и (2.2) получим

$$N_k = N \cdot k. \quad (2.3)$$

С учетом (2.3) общее число компонентов в k -кратно резервированной микросхеме будет

$$N_{kM} = N \cdot k + U_k m_k, \quad (2.4)$$

где m_k — число компонентов в k -кратном мажоритарном клапане, или, иначе говоря, объем мажоритарного клапана.

2.2. Мажоритарный клапан

Как известно, мажоритарный клапан для k -кратного резервирования, или, иначе говоря, k -кратный мажоритарный клапан, имеет k двоичных входов (k — нечетное) и формирует выходной логический сигнал, равный значению сигнала на большинстве этих входов. Логическая функция мажоритарного клапана может быть реализована на любых логических элементах, в частности на элементах ИЛИ-НЕ, либо на элементах И-НЕ. В дальнейшем для примеров будем ориентироваться на мажоритарные клапаны, выполненные на элементах ИЛИ-НЕ.

Можно показать, что k -кратный мажоритарный клапан представляет собой логическую схему, по своей логической функции эквивалентную схеме, содержащей C_k^r логических элементов ИЛИ-НЕ на r входов каждый и один логический элемент ИЛИ-НЕ на C_k^r входов. Здесь C_k^r — число сочетаний из k по r , где $r = (k + 1)/2$, k — нечетное число. С учетом этого имеем:

$$C_k^r = k! / \{[(k + 1)/2]! \cdot [(k - 1)/2]!\}.$$

При $k = 3$ имеем $r = 2$ и $C_3^r = 3$. В этом случае логическая функция y_3 , формируемая на выходе мажоритарного клапана, будет равна

$$y_3 = x_1 \cdot x_2 + x_1 \cdot x_3 + x_2 \cdot x_3,$$

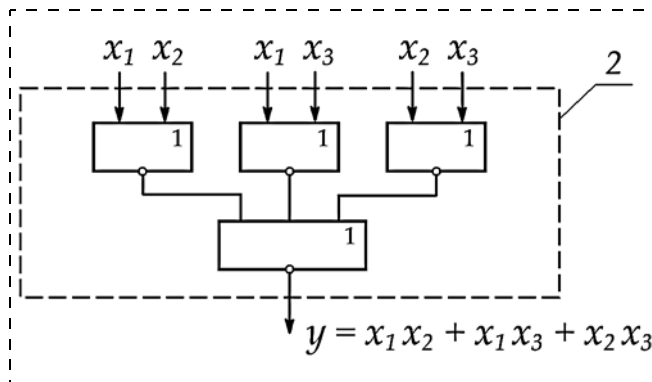


Рис. 2. Схема k -кратного (при $k = 3$) мажоритарного клапана, реализованного на элементах ИЛИ-НЕ

Fig. 2. Circuit of a k -fold (at $k = 3$) majority valve realized on OR-NOT elements

где x_1, x_2, x_3 — входные двоичные сигналы мажоритарного клапана, знаки $\cdot$ и $+$ — знаки логического умножения (конъюнкции) и логического сложения (дизъюнкции).

В качестве примера на рис. 2 показана схема k -кратного мажоритарного клапана 2 при $k = 3$, реализованного на элементах ИЛИ-НЕ. Он содержит три входных двухвходовых элемента ИЛИ-НЕ и один выходной трехвходовой элемент ИЛИ-НЕ. Примем, что входной двухвходовой элемент ИЛИ-НЕ в мажоритарном клапане содержит три транзистора, а выходной трехвходовой элемент ИЛИ-НЕ этого клапана, пригодный для дублирования, содержит шесть транзисторов. Тогда общее число транзисторов в этом недублированном клапане будет 15, а дублированный мажоритарный клапан будет содержать 30 транзисторов. Эти числа являются примерами значений объема m_k мажоритарного клапана при $k = 3$. В этих примерах среднее число транзисторов на логический элемент в нерезервированном мажоритарном клапане, содержащем четыре элемента НЕ-ИЛИ, будет 3,75.

Аналогичным образом при $k = 5$ имеем $r = 3$ и $C_5^r = 10$, а при $k = 7$ имеем $r = 4$ и $C_7^r = 35$.

Реализация мажоритарных клапанов при $k = 5$ и $k = 7$ может быть более разнообразной, чем при $k = 3$, в зависимости от используемых логических элементов. Например, для реализации недублированного мажоритарного клапана при $k = 5$ может потребоваться 13 элементов ИЛИ-НЕ на три входа по четыре транзистора в каждом, один элемент ИЛИ-НЕ на четыре входа, содержащий пять транзисторов, т. е. всего 57 транзисторов. А для реализации недублированного мажоритарного клапана при $k = 7$ может потребоваться 44 элемента ИЛИ-НЕ на четыре входа по пять транзисторов в каждом, один элемент ИЛИ-НЕ на три входа, содержащий по четыре транзистора, т. е. всего 224 транзистора.

2.3. Выбор числа U_k узлов микросхемы, каждый из которых содержит один мажоритарный клапан

Представляется разумным, чтобы суммарный объем логических блоков, контролируемых одним мажоритарным клапаном, был больше объема этого мажоритарного клапана, т. е., чтобы выполнялось следующее условие:

$$k \cdot l_k > m_k, \quad (2.5)$$

откуда

$$l_k > m_k/k. \quad (2.6)$$

Из (2.2) имеем

$$U_k = N/l_k, \quad (2.7)$$

где U_k — целое.

С учетом (2.6) получим из (2.7):

$$U_k < N \cdot k/m_k. \quad (2.8)$$

Условие $U_k = 1$ соответствует так называемому мажоритарному резервированию с "переплетенной избыточностью", которое под названием "*interwoven redundancy*" предложено в работе [8]. При использовании этого способа резервированная микросхема состоит из k резервирующих друг друга логических блоков и одного мажоритарного клапана.

Условие $U_k > 1$ соответствует случаю, когда микросхема содержит U_k резервированных узлов, каждый из которых состоит из k резервирующих друг друга логических блоков и одного мажоритарного клапана.

Напишем вместо (2.6), что

$$l_k = q \cdot m_k/k, \quad (2.9)$$

где $q > 1$.

Тогда вместо (2.8) запишем

$$U_k = N \cdot k/(q \cdot m_k). \quad (2.10)$$

Приняв для примера $q = 4$ и $N = 10^{12}$ транзисторов, найдем примерное значение U_k при разных k . При $k = 3$, $m_k = 30$ транзисторов получим $U_k = 0,25 \cdot 10^{11}$. При $k = 5$, $m_k = 51$ транзисторов получим $U_k \approx 0,245 \cdot 10^{11}$. При $k = 7$, $m_k = 238$ транзисторов получим

$$U_k \approx 0,735 \cdot 10^{10}.$$

3. Вероятность отказа k -кратно мажоритарно резервированной микросхемы

3.1. Модель k -кратно резервированной микросхемы с мажоритарными клапанами

В соответствии со структурой k -кратно резервированной микросхемы с мажоритарными клапанами, описанной выше, будем считать, что модель этой микросхемы состоит из двух частей: набора одинаковых резервируемых логических блоков, контролируемых мажоритарными клапанами, и набора этих мажоритарных клапанов. Отказ резервированной микросхемы может произойти вслед-

ствие отказа в наборе резервируемых логических блоков или отказа в наборе мажоритарных клапанов. Для упрощения будем считать эти виды отказов несовместными событиями, что не повлияет качественно на характер конечных результатов.

Резервируемые логические блоки, объединяемые в один k -кратно резервированный узел, т. е. контролируемые одним мажоритарным клапаном, будем называть одноузловыми блоками. В каждом резервированном узле содержится k одноузловых блоков, рассматриваемых как кортеж блоков. Набор резервируемых логических блоков можно представить как множество кортежей одноузловых блоков, в котором число этих кортежей равно числу U_k резервированных узлов. Это множество кортежей представим в виде k непересекающихся между собой подмножеств $M_1, M_2, \dots, M_k$, содержащих каждое по U_k непарных блоков, т. е. блоков, никакая пара которых не входит в один узел. Другими словами, в каждом из этих подмножеств не содержатся никакие два блока, являющиеся одноузловыми. Отказом резервированной микросхемы является отказ большинства блоков, входящих в какой-либо один узел, т. е. отказ не менее, чем $(k + 1)/2$ одноузловых блоков, т. е. блоков, входящих в один кортеж. При этом блоки, входящие в один кортеж, могут отказать под воздействием разных частиц либо в разное время, либо одновременно.

В течение времени облучения резервированной микросхемы от начального момента, принятого за ноль, до наступления момента $t_{\text{отк.р}}$ отказа этой микросхемы с вероятностью, которая будет определена ниже, в каждом из подмножеств $M_1, M_2, \dots, M_k$ может оказаться более одного отказавшего блока и число отказавших блоков в этих подмножествах в общем случае будет неодинаковым. Однако при этом резервированная схема продолжает работать верно. Она откажет только в момент времени $t_{\text{отк.р}}$, когда в одном кортеже появится $(k + 1)/2$ или более отказавших одноузловых блоков, входящих в разные подмножества $M_1, M_2, \dots, M_k$, но необязательно во всех из них. Отказ такого числа одноузловых блоков в кортеже будем называть отказом кортежа, в который эти блоки входят. Отказ кортежа является отказом микросхемы. Заметим, что под воздействием разных частиц могут появиться несколько отказавших кортежей. Возможно, что в одних таких кортежах сначала откажет блок, содержащийся в одном подмножестве, например в M_1 , а в других таких кортежах сначала откажет блок, содержащийся в другом подмножестве, например в M_k . Каждое из этих подмножеств можно рассматривать как гипотетическую нерезервированную микросхему, соответствующую $1/k$ части общего числа блоков резервированной микросхемы и содержащую U_k непарных блоков, т. е. блоков, никакая пара которых не является одноузловой.

Отметим, что по сравнению с покомпонентным дублированием задача учета отказов межсоединений при облучении мажоритарно резервированных микросхем упрощается по следующим причинам. Соединения между узлами и соединения между блоками и мажоритарными клапанами в узле относятся к внешним межсоединениям, которые могут быть сделаны безотказными при облучении благодаря увеличению их ширины или их дублированию. Ошибки вследствие отказов межсоединений внутри резервируемых блоков, как и вследствие любых других отказов внутри этих блоков, исправляются мажоритарными клапанами. И только при построении мажоритарных клапанов необходимо обратить особое внимание на обеспечение высокой отказоустойчивости межсоединений внутри них путем увеличения их ширины или дублирования.

3.2. Оценка вероятности отказа k -кратно мажоритарно резервированной микросхемы вследствие отказа резервируемых логических блоков

Оценим сначала вероятность P_g отказа хотя бы одного блока в одном из подмножеств $M_1, M_2, \dots, M_k$, содержащем U_k непарных блоков, за время $t_{отк k}$ облучения.

По аналогии с выводом формулы (1.1) вероятности отказа для нерезервированной микросхемы, приведенным в работе [1], можно показать, что при распределении количества повреждений каждого блока в одном подмножестве M_i ($i = 1, 2, \dots, k$) по закону Пуассона, вероятность P_g будет

$$P_g = \Phi_k \cdot S_g \cdot W \ll 1, \quad (3.1)$$

где Φ_k — флюенс для k -кратно резервированной мажоритарно микросхемы за время $t_{отк k}$ облучения; S_g — площадь гипотетической нерезервированной микросхемы, содержащей U_k непарных блоков (эта площадь равна $1/k$ площади, занимаемой всем набором логических блоков в мажоритарно резервированной микросхеме); W — вероятность отказа нерезервированной части микросхемы, расположенной на единице ее площади, при попадании частицы в эту единицу площади.

Флюенс для мажоритарно резервированной микросхемы представим в следующем виде:

$$\Phi_k = I \cdot t_{отк k}, \quad (3.2)$$

где I — интенсивность излучения; $t_{отк k}$ — время облучения до момента отказа k -кратно резервированной микросхемы с вероятностью, которая будет определена ниже.

Площадь гипотетической нерезервированной микросхемы будет

$$S_g = s_l \cdot U_k, \quad (3.3)$$

где s_l — площадь логического блока, содержащего l_k компонентов при k -кратном резервировании; U_k — число непарных блоков в гипотетической нерезер-

вированной микросхеме, равное числу узлов в резервированной микросхеме.

Отметим, что после отказа хотя бы одного блока в подмножестве M_i с вероятностью $P_g \ll 1$ облучение микросхемы продолжается, но накапливаемое вследствие этого количество ее повреждений нас не интересует, поскольку отказ состоялся.

Найдем теперь вероятность P_{bk} отказа k -кратно резервированной микросхемы вследствие отказов в резервируемых логических блоках при исправных мажоритарных клапанах. Отказ такой микросхемы произойдет при отказе одного из U_k ее узлов, т. е. при отказе хотя бы одного сочетания по r блоков из k в этом узле. Рассмотрим сначала вычисление вероятности P_{bk} при троировании, т. е. при $k = 3$. Обозначим вероятности P_g отказа хотя бы одного блока в одном из подмножеств M_1, M_2, M_3 соответственно через P_{g1}, P_{g2}, P_{g3} . Тогда с учетом того, что в сочетании два отказавших блока и один исправный, либо три отказавших блока, вероятность P_{b3} при $k = 3$ можно представить в виде:

$$P_{b3} = [P_{g1} \cdot P_{g2} \cdot (1 - P_{g3}) + P_{g1} \cdot P_{g3} \cdot (1 - P_{g2}) + P_{g2} \cdot P_{g3} \cdot (1 - P_{g1}) + P_{g1} \cdot P_{g2} \cdot P_{g3}] / U_3.$$

Подставив в это выражение $P_{g1} = P_{g2} = P_{g3} = P_g$, после преобразований получим

$$P_{b3} = (3 \cdot P_g^2 - 2 \cdot P_g^3) / U_3,$$

откуда при $P_g \ll 1$ получим

$$P_{b3} \approx (3 \cdot P_g^2) / U_3.$$

Здесь $1/U_3$ — относительная вероятность того, что за время облучения до отказа троированной микросхемы откажет один узел.

Обобщим этот пример вычисления P_{b3} на случаи любых нечетных $k \geq 3$. Вычисление вероятности P_{bk} основывается на том, что вероятность отказа одного узла определяется суммой вероятностей отказов сочетаний блоков в этом узле. Хотя отказы разных сочетаний блоков в одном узле — события совместные, можно для упрощения с большей степенью приближения считать эти события несовместными. При этом условии найдем

$$P_{bk} = C_k^r \cdot P_g^r / U_k, \quad (3.4)$$

где C_k^r — число сочетаний из k по r , равное числу r комбинаций сигналов из k входных сигналов k -кратного мажоритарного клапана, или, иначе говоря, числу r -входовых входных логических элементов (например, элементов ИЛИ-НЕ k -кратного мажоритарного клапана) остальные величины определены выше.

Здесь $1/U_k$ — относительная вероятность того, что за время облучения до отказа k -кратно мажоритарно резервированной микросхемы откажет один узел.

Несмотря на множитель C_k^r , при вычислении вероятности P_{bk} должно соблюдаться условие $P_{bk} \ll 1$, чему способствует ограничение $P_g \ll 1$. Подставив (3.1) в (3.4), с учетом (3.3) получим

$$P_{bk} = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot s_l \cdot U_k \cdot W)^r / U_k \ll 1. \quad (3.5)$$

Здесь

$$s_l = s_{\text{я}} \cdot l_k, \quad (3.6)$$

$$s_{\text{я}} = S_{\text{н}} / N, \quad (3.7)$$

где $s_{\text{я}}$ — площадь ячейки (компонента) нерезервированной микросхемы; l_k — число компонентов в логическом блоке при k -кратном резервировании; $S_{\text{н}}$ — площадь нерезервированной микросхемы; N — число ячеек (компонентов) в нерезервированной микросхеме.

Подставив (2.7) и (3.4) в (3.5) вместо $(s_l \cdot U_k)$, с учетом (3.7) получим

$$P_{bk} = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot S_{\text{н}} \cdot W)^r / U_k \ll 1. \quad (3.8)$$

3.3. Оценка вероятности отказа k -кратно резервированной микросхемы вследствие отказа мажоритарных клапанов

Случай нерезервированных мажоритарных клапанов. Вероятность P_{Mk} отказа хотя бы одного клапана из набора нерезервированных мажоритарных клапанов в k -кратно резервированной микросхеме будет

$$P_{Mk} = \Phi_k \cdot S_{Mk} \cdot W \ll 1, \quad (3.9)$$

где Φ_k — флюенс для k -кратно резервированной микросхемы за время $t_{\text{отк}k}$ облучения; S_{Mk} — площадь, занимаемая набором нерезервированных k -кратных мажоритарных клапанов в k -кратно резервированной микросхеме; величина W — определена выше как вероятность отказа нерезервированной части микросхемы на единицу ее площади, при попадании частицы в единицу площади.

Площадь S_{Mk} , занимаемая набором нерезервированных k -кратных мажоритарных клапанов в k -кратно резервированной микросхеме, будет

$$S_{Mk} = s_{mk} \cdot U_k, \quad (3.10)$$

где s_{mk} — площадь одного нерезервированного k -кратного мажоритарного клапана; U_k — число k -кратных мажоритарных клапанов в микросхеме, равное числу узлов в ней. Здесь

$$s_{mk} = m_{k\text{н}} \cdot s_{\text{я}}, \quad (3.11)$$

где $m_{k\text{н}}$ — число компонентов в нерезервированном k -кратном мажоритарном клапане; $s_{\text{я}}$ — площадь, занимаемая одной ячейкой (компонентом) в нерезервированной микросхеме и определяемая формулой (3.7).

Подставив (3.10) в (3.9), получим с учетом (3.11):

$$P_{Mk} = \Phi_k \cdot m_{k\text{н}} \cdot (S_{\text{н}} / N) \cdot U_k \cdot W, \quad (3.12)$$

и с учетом (2.7):

$$P_{Mk} = \Phi_k \cdot m_{k\text{н}} \cdot (S_{\text{н}} / l_k) \cdot W. \quad (3.13)$$

Случай дублированных мажоритарных клапанов.

По аналогии с оценкой вероятности отказа по компонентно дублированной микросхеме найдем вероятность P_{Mkd} отказа набора дублированных k -кратных мажоритарных клапанов, а именно по аналогии с (1.12) при условии $U_k \gg 2$, т. е. при больших значениях U_k :

$$P_{Mkd} = P_{Mk}^2 / 0,5 U_k, \quad (3.14)$$

где по прежнему P_{Mk} — вероятность отказа набора нерезервированных мажоритарных клапанов в k -кратно резервированной микросхеме, определенная в (3.9), U_k — число узлов в этой микросхеме.

Подобным же образом найдем вероятность P_{Mkd} по аналогии с (1.13) при несоблюдении условия $U_k \gg 2$, т. е. при малых значениях U_k :

$$P_{Mkd} = P_{Mk}^2 / (1 + 0,5 U_k). \quad (3.15)$$

Найдем отношения вероятности отказа нерезервированного мажоритарного клапана к вероятности отказа дублированного мажоритарного клапана:

$$\beta = P_{Mk} / P_{Mkd}. \quad (3.16)$$

Если принять, что $U_k = 0,25 \cdot 10^{10}$, то с учетом (3.14) при $P_{Mk} = 10^{-3}$, $k = 3$, получим $\beta = 1,25 \cdot 10^{13}$, откуда видно, что использование дублированных мажоритарных клапанов позволяет снизить вероятность отказа набора мажоритарных клапанов на порядки по сравнению со случаем использования нерезервированных мажоритарных клапанов.

Если принять, что $U_k = 1$, то с учетом (3.15) при $P_{Mk} = 10^{-3}$, $k = 3$ получим $\beta = 1,5 \cdot 10^3$, т. е. в данном случае вероятность отказа набора дублированных мажоритарных клапанов уменьшается примерно на три порядка.

Дальнейшее снижение вероятности отказа мажоритарных клапанов обеспечивается более сложным методом их резервирования, описанным в нашем Ноу-Хау [9].

3.4. Оценка полной вероятности отказа k -кратно резервированной микросхемы вследствие отказа мажоритарных клапанов и резервируемых логических блоков

Как говорилось выше, будем считать отказ резервированного логического блока и отказ мажоритарного клапана в k -кратно резервированной микросхеме событиями несовместными. С учетом этого полную вероятность P_k отказа k -кратно резервированной микросхемы можно представить в виде:

$$P_k = P_{bk} + P_M. \quad (3.17)$$

где P_{bk} — вероятность отказа k -кратно резервированной микросхемы вследствие отказа резервируемых блоков при исправных мажоритарных клапанах, представленная формулой (3.8); P_M — вероятность отказа набора мажоритарных клапанов.

В качестве вероятности P_M используется вероятность отказа мажоритарных клапанов, соответствующая уровню их резервирования. Так, если мажоритарные клапаны не резервированы, то $P_M = P_{Mk}$ в соответствии с формулой (3.13). Если мажоритарные клапаны дублированы, то $P_M = P_{Mkd}$ в соответствии с формулой (3.14), либо с формулой (3.15) в зависимости от выполнения или невыполнения условия $U_k \gg 2$.

Желательно использовать настолько надежные мажоритарные клапаны, чтобы выполнялось условие

$$P_M \ll P_{bk}. \quad (3.18)$$

В этом случае $P_k \approx P_{bk}$.

Найдем вероятность отказа k -кратно резервированной микросхемы с использованием дублированных мажоритарных клапанов при выполнении условия $U_k \gg 2$.

Подставив (3.8) и (3.14) в (3.17) при $P_M = P_{Mkd}$, получим

$$P_k = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot S_H \cdot W)^r / U_k + P_{Mk}^2 / 0,5 U_k, \quad (3.19)$$

где все величины определены выше.

Подставим теперь (3.13) в (3.19):

$$P_k = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot S_H \cdot W)^r / U_k + [\Phi_k \cdot m_{kH} \cdot (S_H / I_k) \cdot W]^2 / 0,5 U_k. \quad (3.20)$$

Например, при $k = 3$, $r = 2$, $C_k^r = 3$ примем, что $m_{kH} = 15$ транзисторов, объем дублированного мажоритарного клапана $m_{kd} = 30$ транзисторов, $N = 10^{12}$. Примем $q = 4$. Из (2.9) при $m_k = m_{kd} = 30$ найдем, что $I_k = 40$, из (2.7) найдем, что $U_k = 3,3 \cdot 10^{11}$. Подставив значения этих величин в (3.19), получим

$$P_3 = [3 \cdot (\Phi_k \cdot S_H \cdot W)^2 + (\Phi_k \cdot 15 \cdot (S_H / 40) \cdot W)^2 \cdot 2] / 3,3 \cdot 10^{11}, \quad (3.21)$$

или

$$P_3 = (\Phi_k \cdot S_H \cdot W)^2 \cdot 0,99 \cdot 10^{-11}. \quad (3.22)$$

Аналогичным путем можно найти величину P_3 для малых значений U_k , т. е. для случая невыполнения условия $U_k \gg 2$.

4. Сравнение отказоустойчивости микросхем при различных методах их резервирования

Сравним отказоустойчивость мажоритарно резервированных микросхем с отказоустойчивостью покомпонентно дублированной и нерезервированной микросхем по вероятностям их отказов.

Из (3.19) и (3.22) видно, что вклад мажоритарных клапанов в оценку вероятности отказа мажоритарно резервированных микросхем весьма незначителен. Поэтому для упрощения будем сравнивать отказоустойчивость покомпонентно дублированной микросхемы с отказоустойчивостью мажоритарно резервированной микросхемы с использованием идеальных (безотказных) мажоритарных клапанов, т. е. примем, что вероятность отказа мажоритарно резервированной микросхемы будет P_{bk} согласно (3.8).

Сравним сначала между собой отказоустойчивость k -кратно мажоритарно резервированных микросхем при $k = 3, 5, 7$. Для этого найдем показатели $\alpha_{3,5}$ и $\alpha_{3,7}$ изменения отказоустойчивости:

$$\alpha_{3,5} = P_{b3} / P_{b5}; \quad (4.1)$$

$$\alpha_{3,7} = P_{b3} / P_{b7}. \quad (4.2)$$

Для вычисления этих показателей при $k = 3, 5, 7$ примем, что $U_k = U$ и $\Phi_k = \Phi$ для всех указанных k и что $S_H = 1 \text{ см}^2$ и $W = 1,5 \cdot 10^{-7}$. Тогда после преобразований получим

$$\alpha_{3,5} = 0,2 \cdot 10^7 / \Phi, \quad (4.3)$$

$$\alpha_{3,7} = 0,038 \cdot 10^{14} / \Phi^2. \quad (4.4)$$

В качестве Φ примем флюенс Φ_H нерезервированной микросхемы из (1.1) при $P_H = 10^{-3}$ и тех же значениях величин S_H и W , указанных выше, т. е. $\Phi = 0,667 \cdot 10^4$. Подставив это значение в (4.3) и (4.4), получим $\alpha_{3,5} = 0,3 \cdot 10^3$ и $\alpha_{3,7} = 0,85 \cdot 10^5$.

Таким образом, отказоустойчивость пятикратно резервированной микросхемы примерно на два порядка выше отказоустойчивости троированной микросхемы, а отказоустойчивость семикратно резервированной микросхемы на пять порядков выше отказоустойчивости пятикратно резервированной микросхемы.

Сравним теперь отказоустойчивость троированной и покомпонентно дублированной микросхем. Для этого найдем показатель $\alpha_{3,2}$ изменения отказоустойчивости:

$$\alpha_{3,2} = P_{b3} / P_2. \quad (4.5)$$

Подставив (1.12) с учетом (1.2), (1.3) и (3.8) при $k = 3$, $C_k^r = 3$ в (4.5) и приняв, что в формулах (1.2) и (2.8) $\Phi_d = \Phi_3 = \Phi_H$, получим

$$\alpha_{3,2} = 1,5 \cdot N / b^2 \cdot U_3. \quad (4.6)$$

При $N = 10^{12}$ и $U_3 = 0,25 \cdot 10^{11}$ (см. пример к формуле (2.10)) после преобразований получим

$$\alpha_{3,2} = 60 / b^2, \quad (4.7)$$

откуда для случая дублирования транзисторов (при $b = 1$) получим $\alpha_{3,2} = 60$, а для случая дублирования двухвходовых логических элементов с дублированием их структуры (при $b = 2,3$) получим 11, 32.

Таким образом, отказоустойчивость покомпонентно дублированной микросхемы оказывается примерно на порядок выше, чем у троированной микросхемы.

Найдем теперь показатель α_{H3} изменения отказоустойчивости:

$$\alpha_{H3} = P_H / P_{b3}. \quad (4.8)$$

Подставив (1.1) и (3.8) при $k = 3$, $r = 2$, $C_k^r = 3$ в (4.8) и приняв, что в (3.8) $\Phi_3 = \Phi_H$, получим

$$\alpha_{H3} = U_3 / (9P_H). \quad (4.9)$$

Например, при $U_3 = 0,25 \cdot 10^{11}$, $P_H = 10^{-3}$ из (4.8) найдем $\alpha_{H3} \approx 0,3 \cdot 10^{12}$.

Таким образом, отказоустойчивость троированной микросхемы на много порядков выше отказоустойчивости нерезервированной микросхемы.

Заключение

Результаты сравнения оценок отказоустойчивости способа мажоритарного резервирования, предложенного способа покомпонентного дублирования микросхем и отказоустойчивости нерезервированной микросхемы при их облучении дали несколько неожиданные результаты. Согласно бытующим представлениям наибольшую отказоустойчивость обеспечивают способы мажоритарного резервирования, а из них — способы с большей кратностью резервирования. Так оно и оказалось при сравнении отказоустойчивости способов мажоритарного резервирования между собой и с отказоустойчивостью нерезервированной микросхемы. Однако результаты сравнения показали, что предложенный способ покомпонентного дублирования повышает отказоустойчивость по сравнению со способом троирования (в приведенном примере приблизительно на порядок). Отметим, что оценки повышения отказоустойчивости способов мажоритарного резервирования давались при идеальных (безотказных) мажоритарных клапанах, а при учете отказоустойчивости этих клапанов эти оценки должны быть несколько хуже.

Высокие сравнительные оценки предложенного способа покомпонентного дублирования объясняются двумя причинами:

- при использовании этого способа выбор верного сигнала при отказе одного дублируемого логического элемента осуществляется автоматически без использования специальных средств (мажоритарных клапанов) за счет того, что в каждом дублируемом логическом элементе установлен специальный выходной каскад, требующий незначительных затрат аппаратуры;
- при мажоритарном резервировании число резервируемых компонентов (узлов) снижается, поскольку суммарный объем резервируемых блоков в каждом из этих узлов должен быть больше

объема мажоритарного клапана, используемого в этом узле.

Действие дополнительного выходного каскада каждого дублируемого логического элемента позволяет обойтись без специального логического средства, выбирающего верный выходной сигнал, так как соединение этих каскадов в дублированном логическом элементе не дает возможности появления на его выходе неверного сигнала при появлении в одном из пары дублируемых элементов одиночных дефектов типа "обрыв" и некоторых дефектов типа "короткое замыкание", а в схемах логических элементов с полным дублированием транзисторов и при появлении в них любых одиночных дефектов типа "короткое замыкание".

При решении вопроса об использовании какого-либо способа резервирования всегда проводится оценка требуемого количества аппаратуры (в данном случае — числа транзисторов в резервированной микросхеме). Понятно, что при покомпонентном дублировании количество аппаратуры будет меньше, чем при других способах резервирования. Однако использование покомпонентного дублирования не всегда возможно при дублировании элементов памяти. Так, оно не представляется возможным при построении микросхем памяти.

Отметим, что полученные в данной работе оценки сделаны на основе упрощенных и довольно грубых расчетных моделей. В дальнейших исследованиях возможны уточнения оценок при совершенствовании расчетных моделей и использовании вместо закона Пуассона других законов распределения вероятностей повреждений, возникающих при облучении.

Список литературы

1. Александров П. А., Бударгин В. В., Жук В. И., Литвинов В. Л. Отказоустойчивость покомпонентно дублированной микросхемы при облучении // Нано- и микросистемная техника. 2015. № 3. С. 10—23.
2. Александров П. А., Жук В. И., Литвинов В. Л. Способ постоянного поэлементного дублирования в дискретных электронных системах (варианты). Патент РФ на изобретение № 2475820 от 10.08.2011, классы МПК G06F11/16, H03K 19/007.
3. Александров П. А., Бударгин В. В., Жук В. В., Литвинов В. Л., Свечников А. Б. Действие излучений на материалы, приборы и схемы наноэлектроники // Ядерная физика и инжиниринг. 2013. Том 4, № 6. С. 590—596.
4. Александров П. А., Бударгин В. В., Жук В. В., Литвинов В. Л. Об отказоустойчивости наноэлектронных интегральных схем при облучении // Нано- и микросистемная техника. 2014. № 1. С. 1—14.
5. Александров П. А., Жук В. И., Литвинов В. Л. Наноэлектроника и радиация // Природа. 2015. № 1. С. 14—21.
6. Han J., Jonker P. A Fault-Tolerant Technique for Nanocomputers: NAND Multiplexing // In Proc. ASCI 2002. The Eighth Annual Conference of the Advanced School for Computing and Imaging. 2002. P. 59—66.
7. Bhaduri D., Shukla S., Graham P., Gokhate M. Comparing Reliability-Redundancy Trade-offs for Two Von Neuman

Multiplexing Architectures // IEEE Trans. on Nanotechnology. 2007. Vol. 6, № 3. P. 265–279.

8. Han J., Jonker P. A. From Massively Parallel Image Processor to Fault Tolerant Nanocomputers. // Proc. 17th. Int. Conf. on Pattern Recognition (ICPR17). 2004. Vol. 3. P. 2–7.

9. Александров П. А., Жук В. И., Литвинов В. Л. Способ резервирования мажоритарных клапанов. М.: НИЦ "Курчатовский институт". 2014. Ноу-хау № 183/2014.

10. Gereth R., Haitz H. Effects of Single Neutron-Induced Displacement Clusters in Special Silicon Diodes // Journal of Applied Physics. 1965. Vol. 36, No. 12. P. 3884–3894.

11. Иванов В. И., Лысов В. Н., Губин А. Т. Справочное руководство по микродозиметрии. М.: Энергоатомиздат, 1986. С. 123–125.

12. Кудряшов Ю. Б. Радиационная биофизика (ионизирующие излучения). — М.: Физматгиз, 2004. С. 92–101.

P. A. Aleksandrov, D. Sc., Director, **V. V. Budaragin**, Ph. D., Senior Researcher, **V. I. Zhuk**, Ph. D., Leading Researcher, **V. L. Litvinov**, D. Sc., Leading Researcher, **S. E. Stelmak**, Researcher Institute of Information Technologies, National Research Center Kurchatov Institute, Moscow, alexandrov_pa@nrcki.ru

Comparative Assessments of the Fault-tolerance of the Majority Redundant and Component-Wise Duplicated Microcircuits under Irradiation

The authors provide assessments of the fault-tolerance of the component-wise duplicated microcircuits and the fault-tolerance of the majority of the redundant microcircuits under irradiation. They also give comparative assessments of the fault-tolerance of the nonredundant, component-wise duplicated and majority redundant microcircuits under irradiation. The fault-tolerance of the component-wise duplicated microcircuits is proved to be higher than that of the triplicated microcircuits.

Keywords: nanoelectronics, microelectronics, fault-tolerance, failure, redundancy in electronic systems, duplication, majority redundancy; majority gates

Introduction

Influence of radiation on the electronic components is a complex process depending on numerous parameters. Among them are a type of radiation influence, energy of particles, material and technology for development of the devices, their size, etc. Therefore, the methods for assessment of that influence on the fault tolerance of the digital microcircuits are extremely important. In [1–5] an assessment of the fault tolerance of microcircuits by their areas is offered, which can be used for various redundancies. This method can be applied in nanoelectronics, in microelectronics under various irradiations.

In [1] the method was developed for assessment of the fault tolerance of the irradiated microcircuits "by the areas", considered in [2–5] and applied for assessment of the componentwise duplications of microcircuits without special logic means for selection of the true signals.

In the given work the method is applied for assessment of the majority redundancy of the microcircuits, under which we will understand k -fold ($k \geq 3$ — odd) constant redundancy with the use of the majority gates [6–8]. This (k -fold redundancy) is understood as a redundancy of k elements (components, nodes, modules) [8].

Here we provide comparisons of the fault tolerances of the redundant microcircuits and the component-wise duplicated microcircuit designed in the way, offered in [1–5] and allowing to provide automatically a true output signal in case of a fault of one or two cells in one duplicated component.

First, we will specify assessment of the fault tolerance of the nonredundant and component-wise duplicated microcircuits [1], taking into account the fact that in case of k -fold majority redundancy it will be necessary to estimate the fault tolerance of the nonredundant and the duplicated majority gates containing considerably less components, than a nonredundant microcircuit.

1. Specification of the comparative assessments of the fault tolerance of the nonredundant and component-wise duplicated microcircuits

The model of a nonredundant microcircuit [1] consists of N cells, identical by their areas and each containing one nonredundant component, the content and functions of which are not considered. As a fault of a microcircuit we will consider a fault of one of its cells, corresponding to the fault of a component containing in it. As in [1], we will assume, that for this model the fault probability of a nonredundant microcircuit will be

$$P_n \approx \Phi_n \cdot S_n \cdot W \ll 1, \quad (1.1)$$

where Φ_n and S_n — are correspondingly the fluence and the area of the nonredundant microcircuit; W — probability of a fault of the nonredundant part of the microcircuit located on a unit of the area, when hit by a particle (for more details about W and its calculation see [1]).

The formula (1.1) [1] was derived for distribution of the number of faults in each cell in a microcircuit by the Poisson's law¹. At that it is assumed, that a fault of a microcircuit containing a big number of cells, takes place in case of a fault of at least of one cell. This occurs in

case of a very small number of damages in the microcircuit cells, numerically equal to the mathematical expectation of the number of damages during the distribution of Poisson. We are interested only in those values of the fluence, for which a fault of one cell of a microcircuit has taken place and at which $P_n \ll 1$. In case of the further irradiation of a microcircuit after a fault of one cell, the number of the damages in it accumulates, but they already do not relate to the probability of the first fault of one cell, i.e. to probability P_n .

Let us consider a probability of a fault of the component-wise duplicated microcircuit, the model of which is described in [1]. This model contains N of the duplicated components, each of which consists of two duplicating each other nonredundant components, occupying one cell, just like in a nonredundant microcircuit. Thus, this model contains numerous $2N$ duplicating components occupying $2N$ of the cells identical by their size. A fault of a duplicated microcircuit is considered as a fault, if it is a fault of any pair of the cells corresponding to each other and forming together a duplicated component. The probabilities of the particles' hit in various cells of the duplicated microcircuit are identical and do not depend on each other.

In this model the set of $2N$ cells of the duplicated microcircuit is presented in the form of two non-intersecting subsets M_1 and M_2 , containing N cells, not integrated into pairs, forming duplicated components. A fault of the duplicated microcircuit is a fault of any pair of the cells corresponding to each other, one of which belongs to the subset M_1 , and another — to M_2 .

By analogy with formula (1.1), the probability of a fault of at least one cell in one of the subsets M_1 and M_2 during t_{fail} irradiation will be

$$P_p = \Phi_d \cdot S_{d,p} \cdot W \ll 1, \quad (1.2)$$

where Φ_d — is the maximal admissible fluence for the duplicated microcircuit; $S_{d,p}$ — is the area of the hypothetical nonredundant microcircuit containing N of cells, equal to half of the area of the duplicated microcircuit; W — is the probability of a fault of one cell, when hit by a particle — formula (1.1).

Since the cell area in the duplicated microcircuit is more than in the nonredundant microcircuit, we will assume that

$$S_{d,p} = b \cdot S_n, \quad (1.3)$$

where S_n — is the area of the nonredundant microcircuit; $b \geq 1$ — is the factor showing in how many times the area of the duplicated component exceeds the area of the nonredundant component; $b = 1$, when the duplicated component is a transistor, and $b > 1$, when the duplicated component represents a logic element; in

the latter case the factor b depends on the number of the inputs of a logic element, its circuit and redundancy of the components integrated into it.

P_p^2 — is the probability of the product of two independent events, one of which consists in a fault of at least one cell in the subset M_1 , and another — of a fault of at least one cell in the subset M_2 . At that, there is no necessity to take into consideration hits of the particles in the same cell of each of the subsets for the maximal admissible fluences Φ_d .

The number of the cases, when two particles hit one component of the duplicated microcircuit consisting of two cells located in different subsets M_1 and M_2 is equal to N — the number of such components in the duplicated microcircuit.

The number of the cases, when two particles hit different components of the duplicated microcircuit, when one cell hits into one component of the microcircuit, and the other into another component, equals to C_N^2 — the number of combinations from N elements by 2:

$$C_N^2 = N!/[2! \cdot (N-2)!]. \quad (1.4)$$

Then the total number of the hit cases with equal probability of the two particles (the first and the second ones) into any cells of the duplicated microcircuit will be:

$$G = N + C_N^2. \quad (1.5)$$

A relative probability of the fact that with probability P_1^2 two cells will fail of one duplicated component located in the subsets M_1 and M_2 ,

$$H = N/G. \quad (1.6)$$

By placing (1.5) in (1.6) and dividing the numerator and the denominator by N , we will receive:

$$H = 1/(1 + C_N^2/N). \quad (1.7)$$

By placing (1.4) in (1.7):

$$H = 1/\{1 + N!/[2! \cdot (N-2)!] \cdot 1/N\}, \quad (1.8)$$

After transformation we will get:

$$H = 1/(1 + 0,5N). \quad (1.9)$$

At $N \gg 2$ from (1.9):

$$H \approx 1/0,5N, \quad (1.10)$$

which is only a half of the relative probability of $1/N$, used for calculation of probability P_2 of a fault of the duplicated microcircuit [1].

We will present a fault probability of a component-wise duplicated microcircuit in the following form:

$$P_2 = P_p^2 \cdot H. \quad (1.11)$$

For the modern microcircuits always $N \gg 2$. If the condition is met, by placing (1.10) in (1.11) we will receive

$$P_2 = P_p^2/0,5N. \quad (1.12)$$

¹ A similar approach with the use of distribution of Poisson for calculation of the probability of damage to an object due to its irradiation is also applied in the other areas, in microdosimetry, in particular, for solving of similar tasks [10–12].

However, for separate nodes of the microcircuit, for example, for the majority gates, inequality of $N \gg 2$ may not be observed. For this

$$P_2 = P_p^2 / (1 + 0,5N). \quad (1.13)$$

Since $P_p \ll 1$, at $N \gg 2$

$$P_2 \ll 1/0,5N. \quad (1.14)$$

And in case the inequality $N \gg 2$ is not observed,

$$P_2 \ll 1/(1 + 0,5N). \quad (1.15)$$

Let us illustrate the received correlations with a numerical example.

At $N = 10^{12}$ and $P_p = 10^{-3}$ from (1.12) $P_2 = 2 \cdot 10^{-18}$.

Let us estimate lowering of the fault probability of the component-wise duplicated microcircuit in comparison with that probability of a nonredundant microcircuit by means of indicator $\alpha_{n,2}$ of changing of the fault tolerance

$$\alpha_{n,2} = P_n / P_2, \quad (1.16)$$

where all the values were determined above.

By placing P_2 and the accepted approximated value of $P_n \approx 10^{-3}$ in (1.16), we will get $\alpha_{n,2} \approx 0,5 \cdot 10^{15}$. At $N = 10^8$ and $P_n \approx 10^{-2}$ $\alpha_{n,2} \approx 0,5 \cdot 10^{10}$. Hence, the fault tolerance of a componentwise duplicated microcircuit is much higher than that of a nonredundant one.

Such big, seeming unreal, indicators of $\alpha_{n,2}$ are due to the fact that the formula (1.12) was derived on the basis of a simplified fault model of a microcircuit. But it illustrates a considerable reduction of the fault probability of a duplicated microcircuit in comparison with a nonredundant microcircuit.

2. Structure of k -fold redundant microcircuit with the majority gates

Let us proceed to consideration of the majority redundant microcircuits and present all the variety of the structures in the form of a generalized structure, and then to propose on its basis a calculated model and assessment of the fault tolerance of those microcircuits.

2.1. General description of the structure of a majority redundant microcircuit

In a general case a majority redundant microcircuit can contain unequal k -fold redundant nodes, which carry out different functions. For simplification reasons, we will consider, that a k -fold redundant microcircuit contains U_k of identical k -fold redundant nodes. Each such node I contains k -fold majority gate 2 and k of the identical controllable logic units 3 fixed on its inputs and reserving each other (fig. 1). We will assume that the majority gate and the controllable logic units consist of identical elementary components, the role of which can be played by the logic elements or transistors containing in them. The total number of the elementary

components in all the logic units containing in all the nodes of k -fold redundant microcircuit is equal to:

$$N_k = U_k \cdot k \cdot l_k, \quad (2.1)$$

where l_k — is the number of components in one logic unit at k -fold redundancy; the other values were defined above.

The number of components in a nonredundant microcircuit is:

$$N = U_k \cdot l_k. \quad (2.2)$$

From (2.1) and (2.2) we get

$$N_k = N \cdot k. \quad (2.3)$$

With account of (2.3) the total number of components in k -fold redundant microcircuit b is:

$$N_{kM} = N \cdot k + U_k m_k, \quad (2.4)$$

where m_k — is the number of components in k -fold majority gate, or the volume of the majority gate.

2.2. Majority gate

As is known, the majority gate for k -fold redundancy, or k -fold majority gate, has k of the binary inputs (k — is an odd number) and forms the output logic signal equal to the signal on the majority of those inputs. The logic function of the majority gate can be realized on any logic elements, in particular on "OR-NOT", or "AND-NOT" elements. Further, we will be guided by the examples of the majority gates made on "OR-NOT" elements.

It is possible to demonstrate that k -fold majority gate is a logic circuit, equivalent by its function to the circuit, containing C_k^r of OR-NOT logic elements on r inputs each, and one OR-NOT logic element on C_k^r inputs. Here C_k^r — is the number of combinations from k of r , where $r = (k + 1)/2$, k — is an odd number. With account of this we have:

$$C_k^r = k! / \{[(k + 1)/2]! \cdot [(k - 1)/2]!\}.$$

At $k = 3$ we have $r = 2$ and $C_k^r = 3$. In this case the logic function y_3 , formed at the output of the majority gate, is equal to

$$y_3 = x_1 \cdot x_2 + x_1 \cdot x_3 + x_2 \cdot x_3,$$

where x_1, x_2, x_3 — are entrance binary signals of the majority gate, signs $\cdot$ and $+$ — are the signs of the logic multiplication (conjunction) and logic addition (disjunction).

Fig. 2 presents a circuit of the k -fold majority gate 2 at $k = 3$, realized on OR-NOT elements. It contains three input 2-input OR-NOT elements and one output 3-input OR-NOT element. At that, let us assume that the input 2-input OR-NOT element in the majority gate contains three transistors, while the output 3-input OR-NOT element of this gate, suitable for duplication, contains six transistors. Then the total number of the transistors in the unduplicated gate will be 15, while the

uplicated majority gate contains 30 transistors. Those numbers are examples of the values of volume m_k of the majority gate at $k = 3$. In those examples the average number of transistors per a logic element in the non-redundant majority gate containing four NOT-OR elements, will be 3, 75.

Similarly, at $k = 5$ we have $r = 3$ and $C_k^r = 10$, and at $k = 7$ we have $r = 4$ and $C_k^r = 35$.

Realization of the majority gates at $k = 5$ and $k = 7$ can be more varied, than at $k = 3$, depending on the applied logic elements. For example, realization of the unduplicated majority gate at $k = 5$ may require 13 OR-NOT elements per three inputs with four transistors in each, 1 OR-NOT element per four inputs, containing five transistors, that is, a total of 57 transistors. And realization of the unduplicated majority gate at $k = 7$ may require 44 OR-NOT elements per four inputs with five transistors in each, one OR-NOT element per three inputs, containing four transistors each, that is, a total of 224 transistors.

2.3. Selection of the number of U_k nodes of a microcircuit, each of which contains one majority gate

It seems reasonable that the total volume of the logic units controlled by one majority gate would be more than the volume of this majority gate, i.e. that the following condition would be satisfied:

$$k \cdot l_k > m_k, \quad (2.5)$$

From which:

$$l_k > m_k/k. \quad (2.6)$$

From (2.2) we have:

$$U_k = N/l_k, \quad (2.7)$$

where U_k — is a whole value.

With account of (2.6) from (2.7) we will get:

$$U_k < N \cdot k/m_k. \quad (2.8)$$

Condition $U_k = 1$ corresponds to the majority redundancy with "the interwoven redundancy", which was proposed in [8]. During the use of this method the redundant microcircuit consists of k logic units, reserving each other, and one majority gate.

Condition U_{k1} corresponds to the case, when a microcircuit contains U_k of the redundant nodes, each of which consists of k logic units, reserving each other, and one majority gate.

Let us instead of (2.6) write down that

$$l_k = q \cdot m_k/k, \quad (2.9)$$

where $q > 1$.

Then instead of (2.8) we will write down

$$U_k = N \cdot k/(q \cdot m_k). \quad (2.10)$$

By accepting $q = 4$ and $N = 10^{12}$ transistors, we will find the approximate value of U_k at different k . At $k = 3$, $m_k = 30$ transistors we will receive $U_k =$

$= 0,25 \cdot 10^{11}$. At $k = 5$, $m_k = 51$ transistors we will receive $U_k \sim 0,245 \cdot 10^{11}$. At $k = 7$, $m_k = 238$ transistors we will receive $U_k \approx 0,735 \cdot 10^{10}$.

3. Probability of fault of a k -fold majority redundant microcircuit

3.1. Model of a k -fold redundant microcircuit with the majority gates

According to the structure of a k -fold redundant microcircuit with the majority gates, we will assume, that a model of this microcircuit consists of two parts: a set of the identical redundant logic units controlled by the majority gates, and a set of those gates. A fault of a redundant microcircuit can occur due to a fault in the set of the redundant logic units or a fault in the set of the majority gates. For simplification reasons, we will assume that those faults are incompatible events, which will not affect qualitatively the final results.

The redundant logic units integrated in one k -fold redundant node, i.e. controlled by one majority gate, we will call one-node units. Each redundant node contains k of the one-node units considered as a tuple of units. A set of the redundant logic units can be presented as a set of tuples of one-node units, in which the number of tuples is equal to the number of U_k of the redundant nodes. We will present this set of tuples in the form of k of nonintersecting subsets of $M_1, M_2, \dots, M_k$, each containing U_k of the unpaired units, that is the units, no pairs of which are integrated into one node. In other words, in each of those subsets there are no two units, which are the one-node ones. A fault of a redundant microcircuit is a fault of the majority of the units integrated into any one node, i.e. a fault of not less, than $(k + 1)/2$ of the one-node units, i.e. the units integrated into one tuple. At that, such units may experience a fault under the influence of different particles, either in different periods of time, or simultaneously.

During the period of irradiation of a redundant microcircuit, from the initial moment accepted as zero, till the moment of $t_{fail,p}$ of a fault of the microcircuit with a probability, which will be defined below, in each of the subsets $M_1, M_2, \dots, M_k$ more than one failed unit can appear, and the numbers of the failed units in those subsets will be unequal. However, at that, the redundant circuit continues to operate correctly. It will fail only during the moment of $t_{отк,p}$, when in one given tuple $(k + 1)/2$ or more of one-node units fail, the units integrated into different subsets $M_1, M_2, \dots, M_k$, but not obligatory into all of them. We will call a fault of such a number of one-node units in a tuple, a fault of the tuple, into which the units are integrated. A tuple fault is a microcircuit fault. We should point out, that under the influence of different particles several tuple faults may appear. It is possible that, at first, it will be a fault of one unit in one subset, say, in M_1 , while in the other tuples it will be a fault of a unit in the other subset, for

example, in M_k . Each of those subsets can be considered as a hypothetical nonredundant microcircuit corresponding to $1/k$ part of the total number of the units of the redundant microcircuit and containing U_k of the unpaired units, in which not a single pair is a one-node pair.

We should point out, that in comparison with a component-wise duplication the task of accounting of the faults of the interconnections under an irradiation of the majority of the redundant microcircuits becomes simpler. The connections between the nodes and between the units and the majority gates in a node belong to the external interconnections, which can be made trouble-free under an irradiation thanks to an increase of their width or duplication. Errors owing to the faults of interconnections inside the redundant units, as well as owing to any other faults inside the units, are corrected by the majority gates. But during construction of the majority gates it is necessary to ensure a high fault tolerance of the interconnections inside of them by increasing their width or duplication.

3.2. Assessment of a fault probability of a k -fold majoritarian redundant microcircuit due to a fault of the redundant logic units

Let us estimate the fault probability P_g of at least one unit in one of the subsets $M_1, M_2, \dots, M_k$, containing U_k of unpaired units, during the period $t_{\text{fail},k}$ of irradiation. By analogy with the formula (1.1) of a fault probability for an nonredundant microcircuit [1] it is possible to show; that during distribution of the number of damages of each unit in one subset M_i ($i = 1, 2, \dots, k$) under Poisson law, probability P_g will be:

$$P_g = \Phi_k \cdot S_g \cdot W \ll 1, \quad (3.1)$$

where Φ_k — is a fluence for k -fold redundant majority microcircuit in the period $t_{\text{fail},k}$ of irradiation; S_g — is the area of a hypothetical nonredundant microcircuit containing U_k of the unpaired units (the area is equal to $1/k$ of the area occupied by all the set of the logic units in the majority redundant microcircuit); W — is probability of a fault of an nonredundant part of the microcircuit located on a unit of its area, when a particle hits in the area unit.

We will present the fluence for the majority redundant microcircuit in the following form:

$$\Phi_k = I \cdot t_{\text{fail},k}, \quad (3.2)$$

where I — is radiation intensity; $t_{\text{fail},k}$ — period of irradiation till the fault moment of k -fold redundant microcircuit with a probability, which will be defined below.

The area a hypothetical nonredundant microcircuit:

$$S_g = s_l \cdot U_k, \quad (3.3)$$

where s_l — is the area of a logic unit; containing l_k of components at k -fold redundancy; U_k — is the number of the unpaired units in a hypothetical nonredundant

microcircuit, equal to the number of nodes in a redundant microcircuit.

We should point out, that after a fault of at least one unit in subset M_i with probability $P_g \ll 1$ the irradiation of a microcircuit proceeds, but the accumulated number of its damages does not interest us, because a fault is already a fact.

Now, let us find probability P_{bk} of a fault of k -fold redundant microcircuit because of the faults in the redundant logic units with the operable majority gates. A microcircuit fault will occur in case of a fault of one of its U_k nodes, i.e. in case of a fault of at least one combination of r units from k in that node. Let us consider calculation of the probability of P_{bk} in case of a triplicated value, i.e. at $k = 3$. We will designate the probabilities P_g of a fault of at least one unit in one of the subsets M_1, M_2, M_3 accordingly through P_{g1}, P_{g2}, P_{g3} . Then taking into account the fact that in a combination of two failed and one serviceable, or three failed units, the probability of P_{bk} at $k = 3$ is possible to present in the following way:

$$P_{b3} = [P_{g1} \cdot P_{g2} \cdot (1 - P_{g3}) + P_{g1} \cdot P_{g3} \cdot (1 - P_{g2}) + P_{g2} \cdot P_{g3} \cdot (1 - P_{g1}) + P_{g1} \cdot P_{g2} \cdot P_{g3}] / U_3.$$

By placing $P_{g1} = P_{g2} = P_{g3} = P_g$ in this expression after transformations we will receive:

$$P_{b3} = (3 \cdot P_g^2 - 2 \cdot P_g^3) / U_3,$$

from where at $P_g \ll 1$

$$P_{b3} \sim (3 \cdot P_g^2) / U_3.$$

Here $1/U_3$ — is a relative probability that during the period of irradiation till the fault of a triplicated microcircuit one node will fail.

Let us generalize an example of calculation of P_{b3} for any odd cases of $k \geq 3$. Calculation of probability P_{bk} is based on the fact that the probability of a fault of one node is determined by the sum of the probabilities of faults of combinations of units in this node. Although the faults of different combinations of the units in one node are compatible events, for simplification reasons and with a big degree of approximation, it is possible to consider these events as incompatible. Under this condition:

$$P_{bk} = C_k^r \cdot P_g^r / U_k, \quad (3.4)$$

where C_k^r — is the number of combinations from k on r , equal to r number of combinations from k input signals of k -fold majority gate, in other words, to the number of r -input of input of the logic elements (OR-NOT elements) of k -fold majority gate), the other values were defined above. Here $1/U_k$ — is a relative probability that during an irradiation till a fault of k -fold majority redundant microcircuit, one node will fail.

During calculation of probability of P_{bk} notwithstanding multiplier C_k^r , the condition of $P_{bk} \ll 1$ should

be observed, to which limit of $P_g \ll 1$ contributes. By placing (3.1) in (3.4), with account of (3.3) we get

$$P_{bk} = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot s_l \cdot U_k \cdot W)^r / U_k \ll 1. \quad (3.5)$$

Here

$$s_l = s_c \cdot l_k, \quad (3.6)$$

$$s_c = S_n / N, \quad (3.7)$$

where s_c — is the area of a cell (component) of a non-redundant microcircuit; l_k — is the number of components in the logic unit at k -fold redundancy; S_n — is the area of a nonredundant microcircuit; N — is the number of cells (components) in a nonredundant microcircuit.

By placing (2.7) and (3.4) in (3.5) instead of $(s_l \cdot U_k)$, with account of (3.7) we will get:

$$P_{bk} = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot S_n \cdot W)^r / U_k \ll 1. \quad (3.8)$$

3.3. Assessment of a fault probability of k -fold nonredundant microcircuit due to a fault of the majority gates

Case of the nonredundant majority gates. Fault probability P_{Mk} of at least one gate from a set of the nonredundant majority gates in a k -fold redundant microcircuit will be:

$$P_{Mk} = \Phi_k \cdot S_{Mk} \cdot W \ll 1, \quad (3.9)$$

where Φ_k — is the fluence for k -fold redundant microcircuit in the period $t_{fail,k}$ of irradiation; S_{Mk} — is the area occupied by a set of nonredundant k -fold majority gates in a k -fold redundant microcircuit; the value of W was defined above as the probability of a fault of a non-redundant part of the microcircuit per unit of its area, when a particle hits in the area unit.

The area of S_{Mk} occupied by a set of nonredundant k -fold majority gates in k -fold redundant microcircuit, will be

$$S_{Mk} = s_{mk} U_k, \quad (3.10)$$

where s_{mk} — is the area of one nonredundant k -fold majority gate; U_k — is the number of k -fold majority gates in a microcircuit, equal to the number of the nodes in it. Here

$$s_{mk} = m_{kn} \cdot s_c, \quad (3.11)$$

where m_{kn} — is the number of components in the non-redundant k -fold majority gate, s_c — is the area occupied by one cell (component) in the nonredundant microcircuit and defined by formula (3.7).

By placing (3.10) in (3.9) with account of (3.11) we will receive:

$$P_{Mk} = \Phi_k \cdot m_{kn} \cdot (S_n / N) \cdot U_k \cdot W. \quad (3.12)$$

And with account of (2.7):

$$P_{Mk} = \Phi_k \cdot m_{kn} \cdot (S_n / l_k) \cdot W. \quad (3.13)$$

Case of the duplicated majority gates. By analogy with the assessment of a fault probability of a compo-

nent-wise duplicated microcircuit we will find probability P_{Mkd} of a fault of a set of the duplicated k -fold majority gates, namely by analogy with (1.12) under condition of $U_k \gg 2$, i.e. at greater values of U_k :

$$P_{Mkd} = P_{Mk}^2 / 0,5 U_k, \quad (3.14)$$

where P_{Mk} — is still a fault probability of a set of non-redundant majority gates in k -fold redundant microcircuit, defined in (3.9), U_k — is the number of nodes in a microcircuit.

In a similar way we will find probability P_{Mkd} by analogy with (1.13) with a non-observance of condition $U_k \gg 2$, i.e. at small values of U_k :

$$P_{Mkd} = P_{Mk}^2 / (1 + 0,5 U_k). \quad (3.15)$$

We will find a relation of a fault probability of the nonredundant majority gate to a fault probability of the duplicated majority gate:

$$\beta = P_{Mk} / P_{Mkd}. \quad (3.16)$$

If we accept, that $U_k = 0,25 \cdot 10^{10}$, with account of (3.14) at $P_{Mk} = 10^{-3}$, $k = 3$ we will receive $\beta = 1,25 \cdot 10^{13}$, whence it is visible, that the use of the duplicated majority gates allows us to lower the fault probability of a set of the majority gates many times in comparison with the case of the use of the nonredundant majority gates.

If we assume that $U_k = 1$, with account of (3.15) at $P_{Mk} = 10^{-3}$, $k = 3$, $\beta = 1,5 \cdot 10^3$, i.e. the probability of a fault of a set of the duplicated majority gates decreases approximately by three orders.

The further decrease of the fault probability of the majority gates is ensured by a more complex method of their redundancy described in our know-how [9].

3.4. Assessment of a full fault probability of a k -fold redundant microcircuit because of a fault of the majority gates and the redundant logic units

As it was said above, we will assume that a fault of the redundant logic unit and a fault of the majority gate in a k -fold redundant microcircuit are incompatible events. With account of this and full probability of fault P_k of a k -fold redundant microcircuit, it is possible to present the following:

$$P_k = P_{bk} + P_M, \quad (3.17)$$

where P_{bk} — is a fault probability of k -fold redundant microcircuit because of a fault of the redundant units with the operable majority gates, presented by formula (3.8); P_M — is a fault probability of a set of the majority gates.

As probability P_M we use the fault probability of the majority gates, corresponding to the redundancy level. So, if the majority gates are nonredundant, then $P_M = P_{Mk}$ according to the formula (3.13). If the majority gates are duplicated, then $P_M = P_{Mkd}$ according

to the formula (3.14), or the formula (3.15), depending on implementation or not implementation of the condition $U_k \gg 2$.

It is desirable to use such reliable majority gates, which would ensure implementation of the condition

$$P_M \ll P_{bk}. \quad (3.18)$$

In this case $P_k \approx P_{bk}$.

Let us find the fault probability of a k -fold redundant microcircuit with the use of the duplicated majority gates, when condition $U_k \gg 2$ is implemented.

By placing (3.8) and (3.14) in (3.17) at $P_M = P_{Mkd}$ we get:

$$P_k = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot S_n \cdot W)^r / U_k + P_{Mk}^2 / 0,5 U_k, \quad (3.19)$$

where the values were defined above.

Now let us place (3.13) in (3.19):

$$P_k = C_k^r \cdot (\Phi_k \cdot S_n \cdot W)^r / U_k + [\Phi_k \cdot m_{kn} \cdot (S_n / l_k) \cdot W]^2 / 0,5 U_k. \quad (3.20)$$

For example, at $k = 3$, $r = 2$, $C_k^r = 3$ let us assume that $m_{kn} = 15$ transistors, the volume of the duplicated majority gate $m_{kd} = 30$ transistors, $N = 10^{12}$. Let us assume that $q = 4$. From (2.9) at $m_k = m_{kd} = 30$ we will find, that $l_k = 40$, from (2.7) we will find, that $U_k = 3,3 \cdot 10^{11}$. By placing these values in (3.19) we get:

$$P_3 = [3 \cdot (\Phi_k \cdot S_n \cdot W)^2 + (\Phi_k \cdot 15 \cdot (S_n / 40) \cdot W)^2 \cdot 2] / 3,3 \cdot 10^{11}, \quad (3.21)$$

or

$$P_3 = (\Phi_k \cdot S_n \cdot W)^2 \cdot 0,99 \cdot 10^{-11}. \quad (3.22)$$

In a similar way it is possible to find P_3 for small values of U_k , i.e. for the case of unimplemented condition of $U_k \gg 2$.

4. Comparison of the fault tolerances of microcircuits in various methods of their redundancy

Let us compare the fault tolerances of the majority redundant microcircuits with the fault tolerance of the component-wise duplicated and nonredundant microcircuits by the probabilities of their faults.

From (3.19) and (3.22) it is visible, that the contribution of the majority gates to the assessment of a fault probability of the majority redundant microcircuits is insignificant. Therefore, for simplification reasons, we will compare the fault tolerance of the component-wise duplicated microcircuit with the fault tolerance of the majority redundant microcircuit with the use of the ideal (trouble-free) majority gates, i.e. we will assume, that the fault probability of the majority redundant microcircuits P_{bk} is in accordance with (3.8).

First, let us compare among themselves the fault tolerances of the k -fold majority redundant microcircuits

at $k = 3, 5, 7$. For this purpose we will find indicators of $\alpha_{3,5}$ and $\alpha_{3,7}$ of the changes of the fault tolerance:

$$\alpha_{3,5} = P_{b3} / P_{b5}; \quad (4.1)$$

$$\alpha_{3,7} = P_{b3} / P_{b7}. \quad (4.2)$$

For calculation of the indicators at $k = 3, 5, 7$ we will assume, that $U_k = U$ and $\Phi_k = \Phi$ for all the specified k and that $S_n = 1 \text{ cm}^2$ and $W = 1,5 \cdot 10^{-7}$. Then, after transformations, we will have:

$$\alpha_{3,5} = 0,2 \cdot 10^7 / \Phi, \quad (4.3)$$

$$\alpha_{3,7} = 0,038 \cdot 10^{14} / \Phi^2. \quad (4.4)$$

As Φ we will assume fluence Φ_n of the nonredundant microcircuit from (1.1) at $P_n = 10^{-3}$ and the same values of S_n and W , i.e. $\Phi = 0,667 \cdot 10^4$. By placing this value in (4.3) and (4.4) we will receive $\alpha_{3,5} = 0,3 \cdot 10^3$ and $\alpha_{3,7} = 0,85 \cdot 10^5$.

Thus, the fault tolerance of the 5-fold redundant microcircuit is approximately by four orders higher than the fault tolerance of the triplicated microcircuit, while the fault tolerance of the 7-fold redundant microcircuit is by five orders higher, than the fault tolerance of the 5-fold redundant microcircuit.

Now, let us compare the fault tolerances of the triplicated and the component-wise duplicated microcircuits. For this purpose we will find indicator $\alpha_{3,2}$ of changes of the fault tolerance:

$$\alpha_{3,2} = P_{b3} / P_2. \quad (4.5)$$

By placing (1.12) with account of (1.2), (1.3) and (3.8) at $k = 3$, $C_k^r = 3$ in (4.5) assuming, that in formulas (1.2) and (2.8) $\Phi_d = \Phi_3 = \Phi_n$, we get

$$\alpha_{3,2} = 1,5 \cdot N / b^2 \cdot U_3. \quad (4.6)$$

At $N = 10^{12}$ and $U_3 = 0,25 \cdot 10^{11}$ (see the example to the formula (2.10)) after transformations we have

$$\alpha_{3,2} = 60 / b^2, \quad (4.7)$$

whence for duplication of the transistors ($b = 1$) we will receive $\alpha_{3,2} = 60$, and for duplication of the two-input logic elements with a structure duplication ($b = 2,3$) we will receive 11, 32.

Thus, the fault tolerance of the component-wise duplicated microcircuit appears to be approximately 10 times higher, than that of the triplicated one.

Now, let us find indicator α_{n3} of the fault tolerance changes:

$$\alpha_{n3} = P_n / P_{b3}. \quad (4.8)$$

By placing (1.1) and (3.8) at $k = 3$, $r = 2$, $C_k^r = 3$ in (4.8) and assuming that in (3.8) $\Phi_3 = \Phi_n$,

$$\alpha_{n3} = U_3 / (9 P_n). \quad (4.9)$$

For example, at $U_3 = 0,25 \cdot 10^{11}$, $P_n = 10^{-3}$ from (4.8) we will find $\alpha_{n3} \approx 0,3 \cdot 10^{12}$. Thus, the fault tolerance of a triplicated microcircuit is by many orders higher, than the fault tolerance of a nonredundant microcircuit.

Conclusion

Results of the comparison of the assessments of the fault tolerance of the method of the majority redundancy, of the proposed method of the component-wise duplication of microcircuits and of the fault tolerance of a nonredundant microcircuit under irradiation have yielded somewhat unexpected results. According to the expectations, the greatest fault tolerance was ensured by the majority redundancy methods, and out of them — the methods with a higher fold of redundancy. And that was proved by the comparison of the fault tolerance of the methods of the majority redundancy among themselves and with the fault tolerance of a nonredundant microcircuit. However, the results demonstrated, that the proposed method of the componentwise duplication raises the fault tolerance in comparison with triplicated method (in the presented example the result was approximately 10 times higher). We should point out that the assessments of the increase of the fault tolerance methods of the majority redundancy were obtained with the ideal (trouble-free) majority gates, while with the account of the fault tolerance of those gates those assessments should be a little bit worse.

The high comparative assessments of the proposed method of the component-wise duplication are explained by two reasons:

— when this method is used, the selection of the true signal at a fault of one duplicated logic element is carried out automatically, without any special means (majority gates), because in each duplicated logic element a special output cascade is installed, demanding only insignificant costs for equipment;

— in case of the majority redundancy, the number of the redundant components (nodes) decreases, because the total volume of the redundant units in each of those nodes should be more than the volume of the majority gate applied in that node.

Action of the additional output cascade of each duplicated logic element allows to do without a special logic means, which chooses the true output signal, because the connection of the cascades in a duplicated logic element prevents occurrence on its output of an incorrect signal at occurrence in one of the pairs of the duplicated elements of single defects of "breakage" type and some defects of "short circuit" type, and in the circuits of logic elements with full duplication of transistors — and at occurrence in them of any single defects of "short circuit" type.

For solving of the question concerning the use of any method of redundancy always an assessment is done of

the demanded quantity of the equipment (in this case — the number of transistors in the redundant microcircuit). It is clear, that in case of a component-wise duplication the quantity of the equipment will be less, than in case of the other methods of redundancy. However, the use of a component-wise duplication is not always possible for duplication of the memory elements. So it is not obviously possible for construction of the memory microcircuits.

Let us point out, that the assessments received during the work were made on the basis of simplified and rather rough calculated models. In future the assessments can be specified due to improvement of the calculated models and use of the other laws of distribution of probabilities of the damages arising because of irradiation, instead of Poisson's law.

References

1. **Aleksandrov P. A., Budaragin V. V., Zhuk V. I., Litvinov V. L.** Otkazoustoychivost' pokomponentno dublirovannoy mikroskhemyy pri obluchenii, *Nano- i mikrosistemnaya tekhnika*, 2015, no. 3, pp. 10—23.
2. **Aleksandrov P. A., Zhuk V. I., Litvinov V. L.** *Sposob postoyannogo poelementnogo dublirovaniya v diskretnykh elektronnykh sistemakh (varianty)*, Patent RF na izobretenie № 2475820 ot 10.08.2011, klassy MPK G06F11/16, H03K19/007.
3. **Aleksandrov P. A., Budaragin V. V., Zhuk V. I., Litvinov V. L., Svechnika A. B.** Deystviya izlucheniya na materialnyy, pribory i skhemyy nanoelektroniki, *Yadernaya fizika i inzhiniring*, 2013, vol. 4, no. 6, pp. 590—596.
4. **Aleksandrov P. A., Budaragin V. V., Zhuk V. I., Litvinov V. L.** Ob otkazoustoychivosti nanoelektronnykh integralnykh skhem pri obluchenii, *Nano- i mikrosistemnaya tekhnika*, 2014, no. 1, pp. 1—14.
5. **Aleksandrov P. A., Zhuk V. I., Litvinov V. L.** Nanoelektronika i radiatsiya, *Priroda*, 2015, no. 1, pp. 14—21.
6. **Han J., Jonker P.** A Fault-Tolerant Technique for Nanocomputers: NAND Multiplexing, *Proc. ASCI 2002, The Eighth Annual Conference of the Advanced School for Computing and Imaging*, 2002, pp. 59—66.
7. **Bhaduri D., Shukla S., Graham P., Gokhate M.** Comparing Reliability-Redundancy Trade-offs for Two Von Neuman Multiplexing Architectures, *IEEE Trans. on Nanotechnology*, 2007, vol. 6, no. 3, pp. 265—279.
8. **Han J., Jonker P. A.** From Massively Parallel Image Processor to Fault Tolerant Nanocomputers, *Proc. 17 th. Int. Conf. on Pattern Recognition (ICPR17)*, 2004, vol. 3, pp. 2—7.
9. **Aleksandrov P. A., Zhuk V. I., Litvinov V. L.** Sposob rezervirovaniya mazhoritarnykh klapanov, Moscow, NRC Kurchatov Institute, 2014, Know-how № 183/2014.
10. **Gereth R., Haitz H.** Effects of Single Neutron-Induced Displacement Clusters in Special Silicon Diodes, *Journal of Applied Physics*, 1965, vol. 36, no. 12, pp. 3884—3894.
11. **Ivanov V. I., Lystsov V. N., Gubin A. T.** *Spravochnoe rukovodstvo po mikrodozometrii*, Moscow, Energoatomizdat, 1986, pp. 123—125.
12. **Kudryashov Yu. B.** *Radiatsionnaya biophizika (ioniziruyushchie izlucheniya)*, Moscow, Phizmatgiz, 2004, pp. 92—101.