

На правах рукописи



Воронова Наталья Владимировна

**Акустические свойства тонких пьезоэлектрических пластин
при воздействии вязких и электропроводящих жидкостей**

01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва 2019

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте радиотехники и электроники им В.А.Котельникова Российской академии наук (ИРЭ им. В.А.Котельникова РАН)

Научный руководитель: **Анисимкин Владимир Иванович**
доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник

Официальные оппоненты: **Бурков Сергей Иванович**
доктор физико-математических наук, доцент, профессор кафедры «Физика твердого тела и нанотехнологий» Института инженерной физики и радиоэлектроники (ИИФиРЭ) ФГАОУ ВО «Сибирский федеральный университет»

Жгун Сергей Александрович
кандидат технических наук, старший научный сотрудник, заведующий научной лабораторией на кафедре «Основы радиотехники» Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова (МЭИ) ФГБОУ ВО «Национальный исследовательский университет «МЭИ».

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Саратовский национальный исследовательский государственный университет имени Н.Г. Чернышевского», г. Саратов

Защита состоится « 1 » марта 2019 г., в 10-00. на заседании диссертационного совета Д 002.231.01 на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института радиотехники и электроники им В.А.Котельникова Российской академии наук (ИРЭ им. В.А.Котельникова РАН) по адресу: 125009, Москва, ГСП-9, ул.Моховая, д.11, коп.7.

С диссертацией можно ознакомиться с библиотеке ИРЭ им. В.А.Котельникова РАН и на сайте <http://www/cplire.ru/rus/dissertations/Voronova/index.html>

Автореферат разослан « » _____ 2019 г.

Ученый секретарь диссертационного совета
доктор физико-математических наук, доцент

 Кузнецова
Ирен Евгеньевна

Введение

Исследование физических свойств твердых и жидких веществ при различных внешних воздействиях позволяет глубже понять природу этих веществ и применить полученные данные к сенсорике – большому научно-техническому направлению, объединяющему явления, эффекты, процессы и алгоритмы из физики, химии, биологии, информатики, электроники, теплотехники и ряда других дисциплин [1,2]. За последние годы в этом направлении произошел значительный прогресс. Чувствительность датчиков стала выше, размеры меньше, избирательность лучше, стоимость ниже. При этом один из наиболее ощутимых скачков произошел в датчиках акустического типа, рынок которых растет на 18 % ежегодно [3].

В начале своего развития акустические волны в твердых телах и твердотельных структурах широко применялись для создания высокочастотных фильтров, линий задержки, резонаторов и генераторов, для которых влияние внешних факторов (температуры, влажности, давления и т.д.) необходимо было минимизировать. Последовавшее за этим использование акустических волн в датчиках на основе тех же устройств, напротив, потребовало обеспечить условия, при которых влияние внешних факторов требуется сделать максимальным, избирательным, воспроизводимым и стабильным. Работа в этом направлении началась в конце 70-х годов XX столетия практически одновременно в СССР [4], США [5] и Италии [6]. Теперь такие датчики созданы для измерения широкого спектра параметров - температуры, давления, ускорения, электрического и магнитного полей, концентрации газов и пр. При этом особое место в ряду акустоэлектронных датчиков занимают детекторы жидкости, потребность в которых особенно возросла в связи с экологической, химической и биологической безопасностью, а также в медицинской, фармацевтической, пищевой и других областях промышленности.

Прогрессу акустоэлектронных датчиков различных типов, в том числе и жидкостных, в значительной степени способствовало наличие технических решений, уже отработанных на акустоэлектронных линиях задержки, резонаторах и генераторах, промышленный выпуск совершенных пьезоэлектрических кристаллов, совместимость технологии изготовления акустоэлектронных датчиков с традиционными технологиями микроэлектроники и развитие вычислительной техники. Этому же способствовало использование зависимости характеристик акустических волн от направления распространения в пьезоэлектрических кристаллах (анизотропии) и многообразия типов волн, которые могут существовать в твердых телах и твердотельных структурах. До

настоящего времени это объединение не практиковалось, а в качестве акустических волн для детектирования жидкостей использовались в основном либо волны сдвиговой и квази-сдвиговой поляризации, либо нормальные волны Лэмба первых номеров, которые не излучают свою энергию из твердого тела в тестируемую жидкость из-за медленной скорости. Поэтому вопрос об исследовании сенсорных свойств малоизученных и недавно открытых акустических волн в анизотропных структурах, включая новый тип акустических колебаний, недавно открытых в ИРЭ им. В. А. Котельникова РАН и получивших название квазипродольных мод Ивана В.Анисимкина [7-10], является актуальной задачей на современном этапе.

Цель диссертационной работы состояла в более полном исследовании особенностей распространения и сенсорных свойств нормальных акустических волн разного типа и разных порядков при воздействии на пьезопластины вязких и электропроводящих жидкостей.

Основные задачи работы.

1. Исследование особенностей возбуждения и распространения нормальных волн высших порядков, включая новые моды квазипродольной поляризации, в кристаллических пластинах со свободными, металлизированными и нагруженными жидкостью поверхностями.
2. Исследование акустических свойств новых слоистых структур, образованных пластинами Si и пьезоэлектрическими пленками ZnO.
3. Исследование сенсорных свойств нормальных волн высших порядков в кристаллических пластинах и слоистых структурах в зависимости от вязкости, электрических характеристик и температуры жидкости, наносимой на одну из поверхностей пластины.
4. Разработка и тестирование чувствительных элементов акустических датчиков для а) одновременного измерения вязкости, электрических характеристик и температуры жидкости микролитрового объема и б) распознавания жидкостей разного типа и сорта по их физическим характеристикам.

Основные положения, выносимые на защиту.

1. Нормальные акустические волны с ненулевым вертикальным смещением способны распространяться в пьезоэлектрических пластинах, нагруженных жидкостью. При этом изменения скорости и амплитуды этих волн при жидкостной нагрузке верхней и нижней поверхностей пластины могут различаться.

2. Нормальные волны с доминирующим продольным смещением существуют в «несимметричных» направлениях тетрагональных и тригональных кристаллов. Направление потока энергии нормальных волн зависит от их порядка.
3. Квазипродольные нормальные волны распространяются в двухслойных (пленка ZnO/пластина Si) и трехслойных (пленка ZnO/пластина Si/пленка ZnO) структурах. Выбором толщин пленок и пластины свойства этих волн варьируются, причем увеличение их коэффициента электромеханической связи и уменьшение их нормальной компоненты смещения на поверхности происходят одновременно.
4. Зависимость чувствительности нормальных акустических волн от их порядка, направления распространения, толщины пластины и длины волны позволяет одновременно измерять несколько параметров жидкостей микролитрового объема, а также проводить идентификацию жидкостей без применения чувствительных покрытий.

Научная новизна полученных результатов.

1. Впервые предложены и исследованы новые акустические среды - одно- и двухслойные структуры на основе кристаллических пластин толщиной порядка длины акустической волны. Показано, что профили смещения нормальных волн в этих структурах не являются ни симметричными, ни антисимметричными относительно середины пластины.
2. Впервые установлены новые свойства нормальных волн в кристаллических пластинах – температурные коэффициенты нормальных волн помимо материальных констант зависят от номера волны n , толщины пластины H , длины волны λ и температурного коэффициента расширения по толщине пластины; потоки энергии волн разных порядков, возбужденных в одном направлении, распространяются, в общем случае, «веерообразно» под разными углами к волновой нормали; при металлизации обеих поверхностей пьезоэлектрической пластины уменьшение скорости волн не равно (меньше) удвоенному уменьшению скорости при односторонней металлизации.
3. Впервые показана возможность существования новых нормальных волн (квазипродольных, Анисимкина И.В.) в неоднородных структурах и кристаллах с низкой степенью симметрии.
4. Разработана новая экспериментальная методика для одновременного измерения нескольких параметров микропроб жидкости (вязкость, проводимость, температура).
5. Разработана новая экспериментальная методика для идентификации жидкостей микролитрового объема.

Научная и практическая значимость.

1. Показано, что при конечной полосе пропускания встречно-штыревых преобразователей нормальные акустические волны высших порядков могут испытывать влияние соседних мод с близкими скоростями и/или интерферировать с гармониками нормальных волн более низкого порядка, имеющими близкие частоты.
2. Установлено, что при толщинах пластин $H \geq 3\lambda$ нормальные акустические волны высших порядков концентрируются в центральной части пластины и становятся непригодными для анализа жидкостей.
3. Установлено, что зависимость температурных коэффициентов нормальных волн от n , H и λ позволяет увеличивать, уменьшать, инвертировать и обращать в ноль эти коэффициенты без изменения материала пластины и его кристаллографического среза.
4. Показано, что зависимость скорости v и поглощения α нормальных волн от их номера n , направления распространения, толщины пластины H и длины волны λ позволяет измерять физические параметры жидких сред и проводить их идентификацию без использования специальных чувствительных покрытий.
5. Предложен и реализован новый подход к созданию многопараметрических акустических датчиков жидкости, основанный на сочетании разных типов волн (нормальных, поверхностных), разных видов «откликов (фазового, амплитудного) и анизотропии волн в пьезоэлектрических пластинах.
6. Предложен и реализован новый подход к идентификации жидкостей микролитрового объема без использования чувствительных покрытий, основанный на зависимости сенсорных свойств нормальных волн нулевого и высших порядков от направления распространения, номера моды, длины волны и толщины пьезокристаллической пластины.
7. Впервые разработан и испытан чувствительный элемент датчика вязкости и температуры жидкости, не чувствительный к электрическим характеристикам жидкости.
8. Впервые разработан и испытан чувствительный элемент трехпараметрического датчика жидкости для одновременного измерения вязкости, температуры и электрических характеристик в одной и той же пробе жидкости микролитрового объема.
9. Впервые разработана и апробирована решетка акустических датчиков для идентификации жидкостей без использования чувствительных покрытий, все элементы которой расположены на одной поверхности пьезоэлектрической пластины.

Достоверность полученных результатов.

Достоверность представленных в диссертации результатов определяется использованием апробированных методов расчета и измерений, пьезоэлектрических кристаллов с известными материальными константами и согласованием экспериментальных данных и теоретических оценок.

Апробация работы.

Результаты, изложенные в диссертации, докладывались и обсуждались на международной молодежной конференции Modern information society formation – problems, perspectives, innovation approaches (Санкт-Петербург, 2010), конкурсах работ молодых ученых, аспирантов и студентов ИРЭ им.В.А.Котельникова РАН (2015, 2016), семинаре Научного Совета по акустике РАН «Успехи акустики-2016» (Москва), II Всероссийской акустической конференции (Нижний Новгород 2017), 2017 Joint Conference of the European Frequency and Time Forum, and the IEEE International Frequency Control Symposium (2017, Besancon, France) и научно-технических советах АО «НИИ «Элпа».

Материалы диссертационной работы использовались при выполнении исследований по грантам:

РФФИ № 15-07-00538-а «Разработка и исследование новых принципов и методов построения акустоэлектронных газовых датчиков и сенсорных решеток для элементной базы распределенных сенсорных систем». Руководитель: д.ф.-м-н. Анисимкин В.И.

РФФИ № 15-07-00692-а «Разработка акустоэлектрических методов и элементной базы для детекции особо опасных биологических объектов в жидкой фазе». Руководитель: к.ф.-м-н. Пятайкин И.И.

РФФИ № 17-07-00750-а «Микроволновые акустические датчики газов и жидкостей на основе составных звукопроводов». Руководитель: к.ф.-м-н. Кузнецова А.С.

РФФИ № 18-07-00074-а «Микроакустические датчики жидкости: от фундаментальных исследований до новых сенсорных элементов». Руководитель: д.ф.-м-н. Анисимкин В.И.

Публикации.

По материалам диссертации опубликовано **15 работ**, из которых **9** - в журналах, входящих в Перечень рецензируемых научных изданий, рекомендованных ВАК Минобрнауки России, **4** - в журналах, индексируемых в наукометрических базах данных Web of Science и Scopus и **2** – патента.

Личный вклад автора заключается в разработке и изготовлении фотошаблонов, изготовлении экспериментальных образцов, участии в расчетах, измерениях, обсуждении результатов и написании научных статей и тезисов конференций. Доклады на мероприятиях, перечисленных в разделе Апробация работы, сделаны лично автором.

Структура диссертации.

Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Объем диссертации составляет 164 страницы машинописного текста, включая 93 рисунка, 19 таблиц и 8 формул. Список использованной литературы содержит 159 наименований.

Во Введении кратко сформулированы актуальность, цели и задачи исследования, научная новизна, научная и практическая значимость работы, основные положения, выносимые на защиту, отражен личный вклад соискателя, обоснована достоверность результатов, указана апробация работы, кратко изложены содержание диссертации по главам.

В Главе 1 дан краткий обзор основных типов акустических колебаний, структур и конструкций, используемых в акустоэлектронных датчиках, с упором на колебания и устройства, предназначенные для анализа жидкостей.

Глава 2 посвящена описанию используемых в диссертации численной и экспериментальных методик. Расчет основных характеристик нормальных волн в кристаллических пластинах со свободными, металлизированными и покрытыми тонкими слоями поверхностями проводился с использованием хорошо апробированной компьютерной программы, разработанной в McGill University [11], и материальных констант [12], многократно проверенных в многочисленных работах других авторов. Подробно описаны все шаги по использованию программы при расчетах скорости v , коэффициента электромеханической связи K^2 , угла Ψ между волновой нормалью и направлением потока энергии, температурных коэффициентов задержки, профилей взаимно ортогональных смещений U_1 , U_2 , U_3 на поверхности и по глубине структуры, а также дисперсионных характеристик v , K^2 и Ψ .

Также описана методика измерения характеристик распространения и сенсорных свойств нормальных волн с помощью 2-х ранее созданных установок - импульсной, полностью исключающей влияние электромагнитной наводки и отраженных акустических сигналов, и установки, работающей в непрерывном режиме, позволяющей одновременно измерять временные изменения (кинетику) амплитудных и фазовых «откликов» волны при внешних воздействиях. Приведен перечень жидкостных растворов, позволяющих проводить калибровку акустических датчиков отдельно на действие вязкости и электрической проводимости жидкости. Сенсорные свойства возбужденных волн

исследовались с помощью жидкостей, имеющих известные физические свойства. В качестве таковых использовались дистиллированная вода с малой вязкостью η и низкой электрической проводимостью σ ($\eta = 1.03$ сПуаз, $\sigma < 10^{-3}$ Сим/м), глицерин с высокой вязкостью и малой проводимостью ($\eta = 1490$ сПуаз, $\sigma < 10^{-3}$ Сим/м) и водные растворы NaCl с малой вязкостью и высокой проводимостью ($\eta \sim 1$ сПуаз, $\sigma \approx 0.5$ Сим/м) [13].

Глава 3 посвящена особенностям возбуждения и распространения нормальных акустических волн в кристаллических пластинах и слоистых структурах на их основе.

В разделе **3.1 [A1, A2]** экспериментально показано, что класс волн, пригодных для детектирования жидкостей, не ограничивается волнам SH-поляризации, а может быть существенно расширен за счет более распространенных нормальных волн Лэмба, и квазипродольных волн Анисимкина И.В. и QL. При нанесении тестируемой жидкости на верхнюю и нижнюю поверхности пластины отклики мод не всегда одинаковы: при $H/\lambda \leq 1$ высшие гармоники мод низких порядков n , локализуются у поверхности с преобразователями и интерферируют с основными гармониками мод высоких порядков, нарушая симметрию откликов; при $H/\lambda \geq 1$ такой интерференции не происходит, поскольку моды высоких порядков локализуются в центральной части пластины, а моды низких порядков - у поверхности с преобразователями, но это снова нарушает симметрию откликов. Делается вывод, что для исключения частотного перекрытия соседних мод и интерференции между гармониками мод низких порядков и модами высоких порядков необходимо использовать ВШП с узкой полосой пропускания ($\Delta f/f \leq 5\%$), пластины с малой нормированной толщиной ($H/\lambda \leq 2.5$) и частоты $f < 3f_0$, где f_0 – основная частота нулевой моды).

В разделе **3.2 [A3]** численно исследована возможность существования недавно обнаруженных квазипродольных мод (QL) и Анисимкина И.В. (AN) в кристаллах низкой симметрии и произвольной ориентации. Эти моды высокого порядка особенно привлекательны для анализа жидкостей, т.к. обладают малым вертикальным смещением u_z и, следовательно, незначительными радиационными потерями в жидкость; они являются слабо дисперсионными и поэтому не подвержены большим отклонениям частоты генерации при вариациях периода ВШП и толщины пластины вследствие погрешностей изготовления.

Расчеты показали, что область существования новых мод не ограничивается кристаллами и направлениями высокой степенью симметрии: моды AN и QL существуют в направлениях и кристаллах с низкой степенью симметрии, таких как тетрагональный $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ с «произвольно выбранными» углами Эйлера (89° , 37° , 104°) и

тригональный 128°Y - LiNbO_3 с углами Эйлера ($0^\circ, 37.86^\circ, \Theta = 0^\circ, 30^\circ, 60^\circ$ и 90°). Условия существования этих мод аналогичны таковым в высокосимметричных средах ($v_n \approx v_L$, $(dv_n/d(H/\lambda)) \leq 100$ м/с). По мере увеличения толщины пластины H/λ и движения по дисперсионной кривой к скорости $v_n \approx v_L$ происходит постепенная трансформация обобщенной волны Лэмба (точка 1, рис.1,а) в моду AN (точка 2, рис.1,а) и снова в обобщенную волну Лэмба (точка 3, рис.1,а). Для дисперсионных кривых без плоского участка (тонкие сплошные линии) такой трансформации не происходит. Профили смещения моды AN в пластине $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ характеризуются однородностью и доминированием продольного смещения u_1 по толщине пластины H/λ (рис.1,б), причем чем слабее дисперсия (меньше наклон дисперсионной кривой), тем более однородно смещение u_1 этой моды по толщине, тем меньше амплитуды двух других смещений u_2 и u_3 и тем более эта мода похожа на продольную объемную волну в том же материале, но без границ. Напротив, волна Лэмба (точка 3 на той же дисперсионной кривой) имеет эллиптическую поляризацию, а смещения U_1, U_2, U_3 этой волны сравнимы друг с другом (рис.1,в).

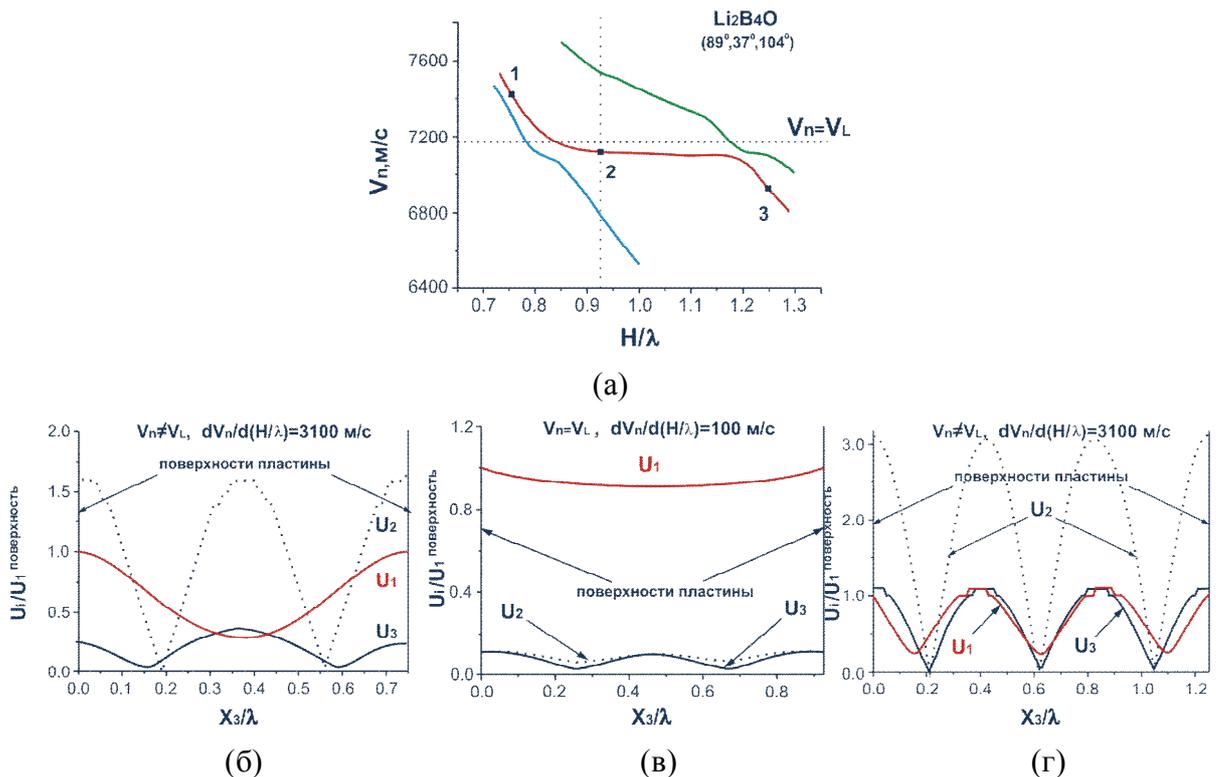


Рис.1. Дисперсионные кривые (а) и профили смещений в точках 1(б), 2(в) и 3 (г) для 3-х соседних мод в пластине $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ с углами Эйлера $89^\circ, 37^\circ, 104^\circ$. (в) - мода AN ($H/\lambda = 0.925$, $v_n = 7122$ м/с $\approx v_L = 7169$ м/с, $dv_n/d(H/\lambda) \approx 100$ м/с; (б, в) – обобщенная волна Лэмба ($H/\lambda = 0.75$ и 1.25 , $v_n \neq v_L$, $dv_n/d(H/\lambda) \approx 3100$ м/с).

Подобно акустическим волнам иных типов, потоки энергии нормальных волн в общем случае не совпадают с волновой нормалью. Особенностью этого свойства для нормальных волн является дополнительная зависимость угла отклонения потока энергии

Ψ не только от направления распространения (угла Θ), но и от номера моды n (Таблица 1). Благодаря этому ВШП, имеющий период λ , излучает моды разных номеров «веерообразно» (под разными углами Ψ_n к направлению распространения). При этом из-за разницы скоростей частоты излученных мод также отличаются друг от друга: $f_n = v_n/\lambda$ (рис.2).

Таблица 1. Углы отклонения потока энергии Ψ нормальных акустических волн в пластине LiNbO_4 с углами Эйлера 0° , 37.86° , 30° ($H = 500$ мкм, $\lambda = 300$ мкм).

n	V_n , м/с	Ψ_n , градусы	Тип моды
0	3720.69	-13.1°	Лэмб
1	3804.95	-8.9°	Лэмб
2	4013.36	-0.1°	Лэмб
3	4272.11	2.7°	Лэмб
4	4678.26	-6.8°	Лэмб
5	4858.73	5.6°	Лэмб
6	5418.39	-2.8°	Лэмб
7	5558.37	5.3°	Лэмб

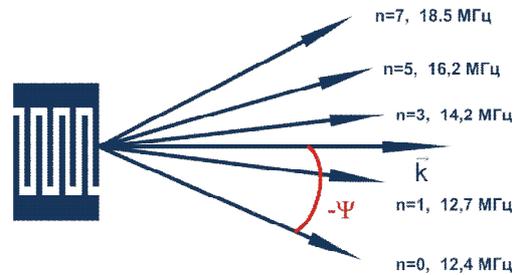


Рис.2. Схематическое представление «веерообразного» излучения потоков энергии нормальных волн согласно Таблице 1. k – волновой вектор. $\Psi_n = (1/V_n)(dV_n/d\Theta)$.

Экспериментальная проверка этой особенности подтвердила выводы численных расчетов.

В разделах 3.3 и 3.4 те же моды исследованы в структурах пленка ZnO /пластина Si и пленка ZnO /пластина Si /пленка ZnO .

В разделе 3.3 [А4] для мод разных номеров рассчитана дисперсия коэффициента электромеханической связи K^2 в зависимости от толщины пластины (рис.3) и толщины пленки (рис.4), определены моды и конфигурации ВШП с наибольшими значениями K^2 , проведено сравнение структур на основе «медленной» пленки ZnO и «быстрой» пленки AlN . Показано, что наряду с традиционными волнами Лэмба в этих структурах существуют моды AN и QL , а диапазон достижимых акустических характеристик по сравнению с «непокрытой» пластиной расширяется. Характеристики нормальных мод в пластинах с пленками могут варьироваться путем изменения материала и толщины пленки, материала и толщины пластины. Естественно было бы предположить, что в трехслойных структурах, состоящих из пленки 1/пластины/пленки 2, вариабельность акустических характеристик и их предельные значения будут еще более улучшены.

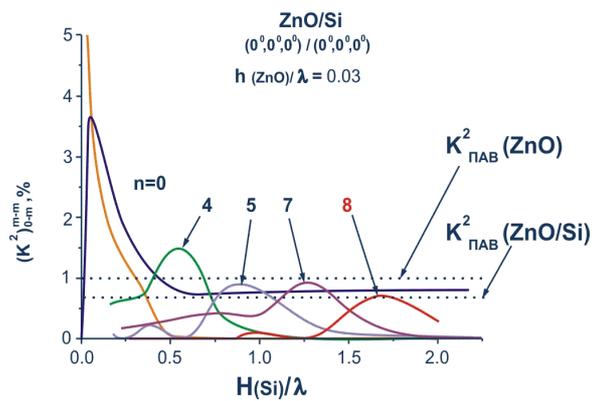


Рис.3. Дисперсия K^2 для мод различных номеров в зависимости от толщины пластины.

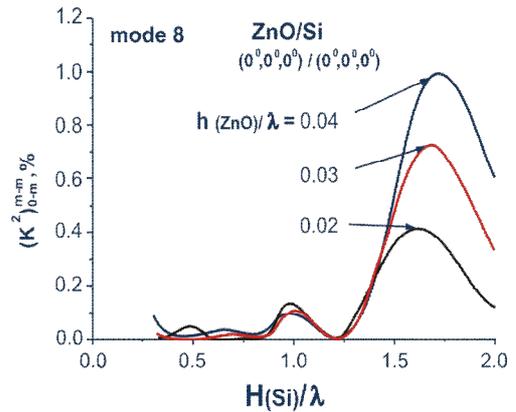


Рис.4. Дисперсия K^2 для моды номер 8 при различной толщине пленки.

Изучение таких структур выполнено в разделе 3.4 [A5, A6]. Прослежена трансформация QL мод от пластины кремния со свободными границами до той же пластины с одной и двумя пленками ZnO. Установлено, что моды слоистых структур не являются ни симметричными, ни антисимметричными, уменьшение нормальной компоненты смещения U_3 этих мод с толщиной пластины носит резонансный характер и сопровождается резким увеличением коэффициента электромеханической связи K^2 , а максимальная величина K^2 в трехслойной структуре ZnO-1/Si/ZnO-2 на порядок превышает таковую в двухслойной структуре ZnO/Si (рис.5, Таблица 2). Экспериментальная проверка этих особенностей подтвердила выводы численных расчетов.

Таблица 2. Моды QL в пластине Si без пленок и с пленками ZnO.

Структура	h/λ	мода	V _s (м/с)	K ² (%)
Si	1.387	QL ₁	8441	0
ZnO/Si	0.0036/1.34	QL ₁	8454	0.14
ZnO/Si/ZnO	0.03/1.34/0.04	QL ₁	7814	0.65
Si	2.080	QL ₂	8441	0
ZnO/Si	0.012/1.9	QL ₂	8517	0.011
ZnO/Si/ZnO	0.05/1.9/0.04	QL ₂	8034	0.23
Si	2.774	QL ₃	8441	0
ZnO/Si	0.0173/2.6	QL ₃	8476	0.016
ZnO/Si/ZnO	0.06/2.6/0.038	QL ₃	8078	0.12

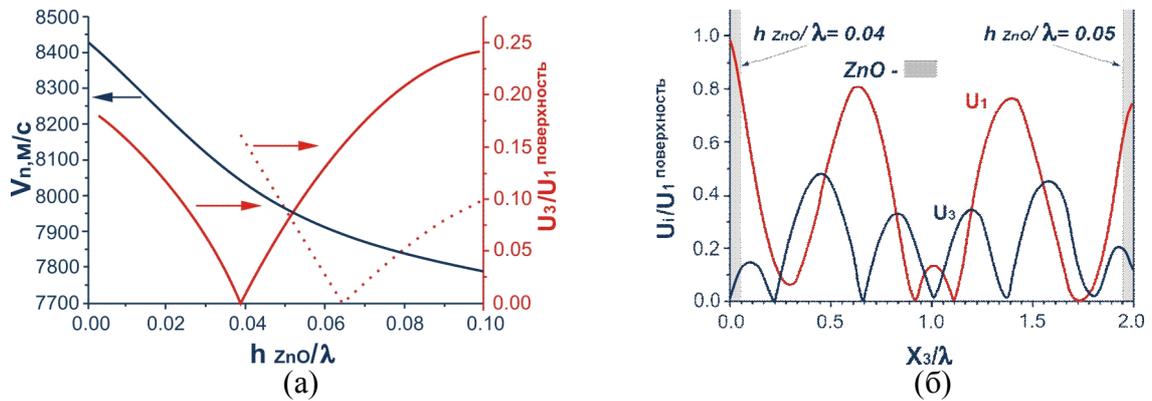


Рис.5. Характеристики моды QL_1 в структуре пленка ZnO(h_{ZnO})/пластина Si/ пленка ZnO (h'_{ZnO}). **(а)** – дисперсионная кривая и смещение U_3 на поверхности второй пленки ZnO (сплошная линия) и на поверхности первой пленки ZnO (пунктир), **(б)** – нормализованные профили упругих смещений в структуре при $H_{Si}/\lambda = 1.9$, $h_{ZnO}/\lambda = 0.05$ и $h'_{ZnO}/\lambda = 0.04$.

Аналогичное нарушение симметрии (антисимметрии) мод наблюдается и при односторонней металлизации пьезоэлектрических пластин. Так, в разделе 3.5 [A7] на примере пластин $128^\circ Y, X+90^\circ - LiNbO_3$ и нормальных мод QL-типа теоретически и экспериментально показано, что при $K^2 \neq 0$ профили мод при металлизации заметно меняются и могут соответствовать как «подтягиванию», так и «отталкиванию» мод от металлизированной поверхности. Это свойство нормальных волн, с одной стороны, позволяет управлять их чувствительностью к нагрузке поверхности, а с другой - указывает на различие этой чувствительности на свободной и металлизированной поверхностях, что не позволяет компенсировать влияние, например, вязкости простым вычитанием сигналов свободного и металлизированного каналов, как это обычно делается для ПАВ.

Глава 4 посвящена исследованию сенсорные свойства нормальных акустических волн.

В разделах 4.1 и 4.2 изучена чувствительность нормальных волн к температуре [A8, A9]. Аппроксимируя дисперсионную зависимость волн вблизи нормированной толщины пластины H/λ линейной функции вида $v = v(H/\lambda) + dv/d(H/\lambda) \times (H/\lambda)$, получено выражение для температурного коэффициента задержки:

$$TKZ = \frac{1}{\Delta t} \frac{\Delta \tau}{\tau} = \left[\alpha_{||} - \frac{1}{v} \frac{dv}{dt} \right] + \frac{1}{v} \frac{dv}{d(H/\lambda)} \times \left(\frac{H}{\lambda} \right) \times [\alpha_{||} - \alpha_{\perp}] \quad (1),$$

в котором 1-й член совпадает с таковым для ПАВ, а 2-й - описывает специфику нормальных волн, связанную с дисперсией. Этот член зависит от наклона дисперсионной кривой $dv/d(H/\lambda)$ при выбранной толщине пластины H/λ и от коэффициентов расширения кристалла по направлению распространения $\alpha_{||}$ и толщины пластины α_{\perp} .

В качестве примера, исследования проводились для волн SH-поляризации в пластинах кварца с углами Эйлера (0° , 132.75° , 90°) при температурах $-40 \div +80^\circ C$.

Результаты расчетов и измерений показали (рис.6), что в отличие от акустических волн поверхностного и объемного типов температурные коэффициенты нормальных волн зависят не только от материальных констант и их температурных зависимостей, но также от номера моды n , толщины пластины H , длины акустической волны λ и коэффициента линейного расширения в направлении толщины пластины α_{\perp} . Эти зависимости позволяют увеличивать, уменьшать и даже обращать в ноль температурные коэффициенты таких волн без изменения материала и ориентации пластины.

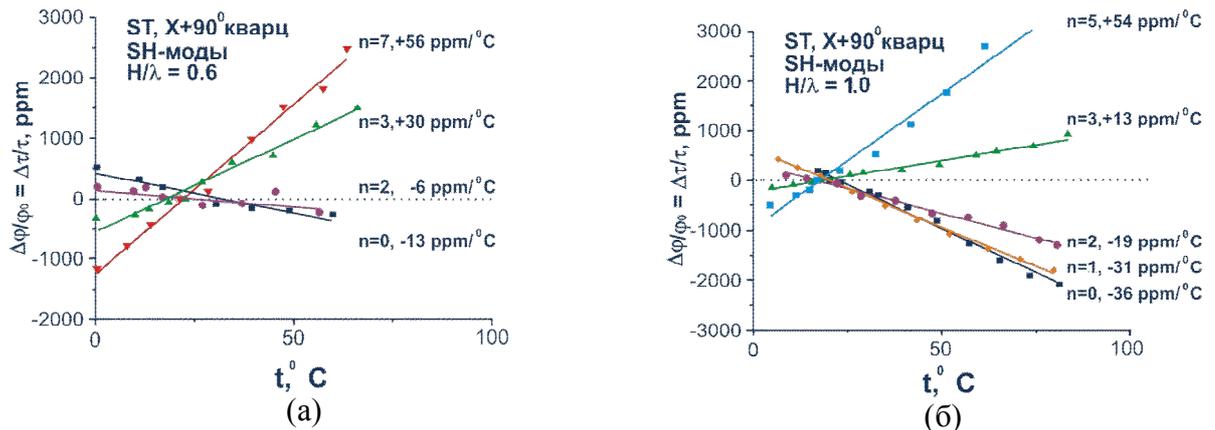


Рис.6. Температурные характеристики нормальных волн SH в ST,X+90°-SiO₂ ($\Delta\phi/\phi_0 = \Delta\tau/\tau$) с нормированной толщиной $H/\lambda = 0.6$ (а) и $H/\lambda = 1.0$ (б). Точки - эксперимент, линии - подгоночные кривые, полученные с помощью Original 8 Lab Program.

Аналогичные результаты были получены и для пластин ниобата и танталата лития, германата и силиката висмута [A9].

Раздел 4.3 [A10, A11] посвящен исследованию чувствительность нормальных волн к электрической проводимости жидкости σ , которая пропорциональна величине K^2 моды i , как показано на рис.3 и 7, меняется с ее номером n , толщиной пластины H и длиной волны λ . Величина этого коэффициента может на порядок превышать его значение для ПАВ в том же материале. При измерении проводимости предпочтительным является фазовый отклик волны, так как имеет с ней однозначную функциональную зависимость (рис.7,б).

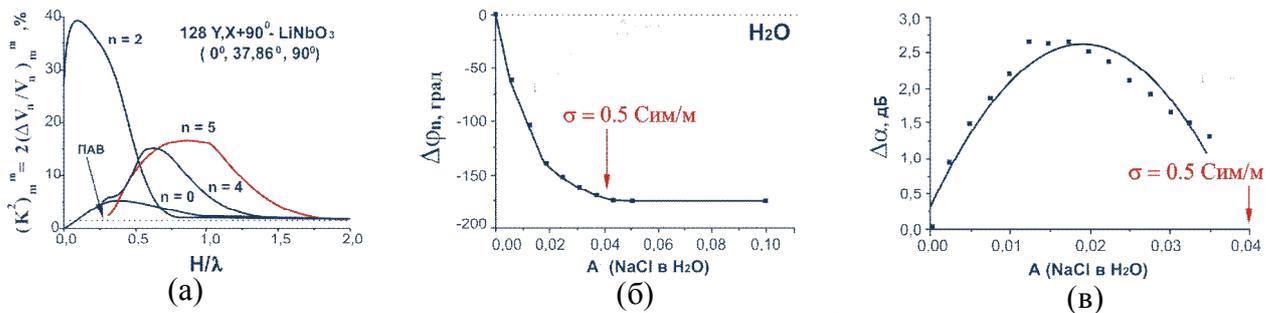


Рис.7. Коэффициенты электромеханической связи K^2 при металлизации обеих поверхностей пластины $128^\circ Y, X+90^\circ$ -LiNbO₃ (а) и калибровочные кривые нормальной волны частотой 14,6 МГц при $H/\lambda = 1,0$ в зависимости от проводимости σ жидкости (б, в). Точки – эксперимент, линии – подгоночные кривые, полученные с помощью Original 8 Lab Program.

Раздел 4.4 [A11] посвящен исследованию чувствительность нормальных волн к вязкости жидкости η . Как и в разделах 4.1-4.3, изменения скорости V (фазы ϕ) и амплитуды A (поглощения α) волн зависят от η по разному для мод разных номеров, а также разных толщин пластины и длин волн (рис.8). Они также меняются при металлизации поверхности пьезоэлектрической пластины из-за перестройки упругих полей пьезоактивных мод в приповерхностном слое. При измерении вязкости жидкости предпочтительным является амплитудный отклик волн $\Delta\alpha$ как наименее зависящий от температуры. Температурная чувствительность нормальных волн в присутствии жидкости отличается от таковой для пластины без жидкостной вязкостной нагрузки (рис.9). Нежелательная чувствительность нормальных волн к электрической проводимости жидкости может быть подавлена либо металлизацией поверхности пьезоэлектрической пластины, либо использованием в качестве материала непьезоэлектрического кремния.

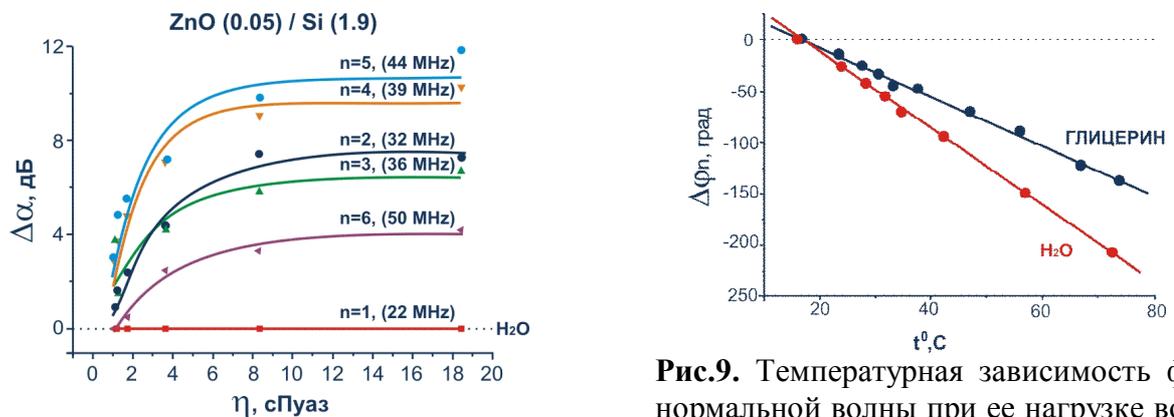


Рис.8. Отклики нормальных волн разных номеров и частот на вязкость жидкости η . Структура - пленка ZnO/пластина Si.

Рис.9. Температурная зависимость фазы нормальной волны при ее нагрузке водой ($\eta = 1.03$ сПуаз) и глицерином ($\eta = 1490$ сПуаз). Частота 14,6 МГц, пластина $128^\circ Y, X+90^\circ$ -LiNbO₃, $H/\lambda = 1,0$.

Базируясь на результатах, полученных в предыдущих разделах диссертации, были разработаны прототипы акустоэлектронных датчиков жидкости.

Первый из них (раздел 4.5 [A11, A12]) предназначен для одновременного измерения 3-х параметров микропробы жидкости объемом порядка 100 мкл – вязкости η , электрической проводимости σ и температуры t , что обычно делается тремя отдельными датчиками (Гл.1). При нанесении пробы на пьезоэлектрическую пластину и ее зондировании 3-мя акустическими волнами упругие и пьезоэлектрические поля волн проникают в анализируемую пробу на глубину ~ 100 мкм и в зависимости от ее свойств меняют свою скорость (фазу $\Delta\varphi$) и амплитуду (поглощение $\Delta\alpha$). В диссертации проведена оптимизация типа зондирующих волн и формы жидкостного отклика для каждой из них (Рис.10, Таблица 3).

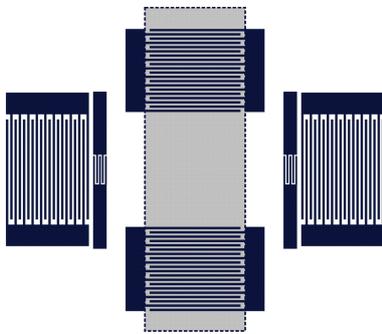


Рис.10. Схематическое изображение трехпараметрического датчика жидкости на основе пластины 128Y-LiNbO_3 ($H = 500$ мкм).

Таблица 3. Характеристики зондирующих волн.

Канал №1, ПАВ, \perp оси X, $f = 185$ МГц		
$\Delta\varphi(\eta)$	$\Delta\varphi(\sigma)$	$\Delta\varphi(t)$
0	0	-11 град/°C
Канал №2, волна Лэмба, \parallel оси X, $f = 29.77$ МГц		
$\Delta\alpha(\eta)$	$\Delta\alpha(\sigma)$	$\Delta\varphi(t)$
9.1 дБ при $\eta = 1500$ сПуаз	0	0
Канал №3, волна Лэмба, \perp оси X, $f = 23.90$ МГц		
$\Delta\varphi(\eta)$	$\Delta\varphi(\sigma)$	$\Delta\varphi(t)$
-6 град при $\eta = 1500$ сПуаз	-33 град при $\sigma = 0.5$ Сим	-2.9 град/°C

Характеристики датчика представлены в Таблице 4:

Характеристика	Значение	Характеристика	Значение
Объем тестируемой пробы V	~ 100 мкл	Погрешность измерения t	менее ± 0.5 °C
Диапазона вязкостей η	1 - 1500 сПуаз	Погрешность измерения σ	± 20 %
Диапазон температур t	10 – 100 °C	Питающее напряжение U	9 В
Диапазон проводимости σ	0 – 0.5 Сим/м	Питающий ток I	100 мА
Погрешность измерения η	± 10 % при $\eta \leq 10$ сПуаз ± 20 % при $10 < \eta \leq 200$ сПуаз ± 40 % при $200 < \eta \leq 1500$ сПуаз	Размер акустической ячейки	$36 \times 20 \times 0.5$ мм ³

Второй прототип (раздел 4.6, [A13, A14, A15]) предназначен для распознавания жидких веществ и определения их соответствия установленным стандартам. Он основан на определенных в предыдущих разделах зависимостях сенсорных свойств нормальных волн от а) направления распространения, б) номера моды и в) нормированной на длину волны толщины пластины. Макет состоит из трехдюймовой пластины $128^\circ\text{Y-LiNbO}_3$ толщиной 500 мкм и 3-х систем по 4 пары встречно-штыревых преобразователей с периодами 200, 300 и 488 мкм, задающими длины волн λ в разных каналах. Преобразователи располагаются по концентрическим окружностям, в центр которых наносится анализируемое вещество (рис.11). Распространяясь по разным направлениям и имея отличающиеся λ , нормальные волны разных порядков проходят через жидкость, по-разному уменьшая свою амплитуду из-за разной чувствительности к ее физическим параметрам (вязкости, электропроводности, температуры и т.д.). Совокупность откликов представляется в виде гистограмм: по углу откладывается номер датчика (акустической моды), по радиусу – соответствующий отклик в дБ. На примере нескольких сортов воды, кофе, молока и бензина продемонстрировано существенное отличие формы и площади гистограмм как для разных жидкостей, так и для разных сортов этих жидкостей (рис.11). Полученные гистограммы представляют собой первые акустические изображения вкуса жидких веществ. Благодаря отсутствию чувствительных покрытий датчик обладает высокой долговременной стабильностью, а результаты измерений – высокой повторяемостью. Благодаря малому проникновению зондирующих волн в пробу по сравнению с ее толщиной форма пробы и ее точный объем не влияют на результаты измерений.

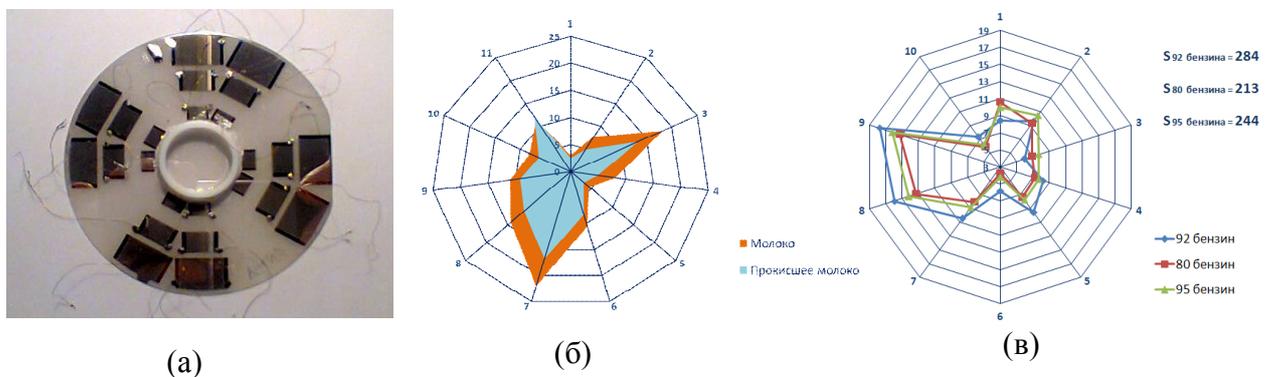


Рис.11. Внешний вид акустоэлектронного датчика для распознавания жидкостей (а) и полученные с его помощью гистограммы молока (б) и бензина (в).

В **Заключении** диссертации сформулированы основные результаты работы:

1. Класс акустических волн, пригодных для детектирования жидкостей, не ограничивается акустическими волнам SH-поляризации (как это считалось в большинстве предыдущих работ), а может быть существенно расширен за счет более распространенных обобщенных волн Лэмба, продольных волн Анисимкина И.В. AN и мод квазипродольной поляризации QL.
2. Моды AN и QL, принадлежащие к семейству нормальных волн высших порядков, могут распространяться в направлениях и кристаллах с низкой степенью симметрии, в двухслойных (пленка/пластина) и трехслойных (пленка 1/пластина/пленка 2) структурах. Благодаря слабой дисперсии вариации толщины пластины и длины акустической волны не приводят к значительным отклонениям частоты этих мод.
3. При толщинах пластин $H/\lambda \geq 3$ возможна интерференция нормальных волн высших порядков между собой, а на частотах $f \geq 3f_0$ (f_0 - частота нулевой моды) – их интерференция с высшими гармониками мод более низких порядков. Наиболее подходящими являются пластины толщиной $H/\lambda \leq 3$, рабочие частоты $f \leq 3f_0$ и преобразователи с числом пар штырей $N \geq 20$.
4. В двухслойных (пленка/пластина) и трехслойных (пленка 1/пластина/пленка 2) структурах свойства нормальных волн варьируются независимым изменением толщин и материалов пластины и пленок.
5. При металлизации поверхности пластины нормальные волны либо «подтягиваются», либо «отталкиваются» от этой поверхности, меняя свою чувствительность к поверхностной нагрузке.
6. В пьезопластинах с односторонней металлизацией и в структурах с одной и двумя пленками разной толщины, нормальные волны не являются ни симметричными, ни антисимметричными относительно плоскости, равноудаленной от свободных поверхностей.
7. Отклонение потока энергии нормальных волн от волновой нормали зависит от номера моды. Потoki энергии мод излучаются на разных частотах и образуют «веер» вокруг направления распространения.
8. Чувствительность нормальных волн к температуре, электрической проводимости и вязкости жидкости, примыкающей к одной из поверхностей пьезоэлектрической пластины, различна и зависит от номера моды n , толщины пластины H , длины акустической волны λ , граничных условий на противоположной поверхности и направления распространения (угла Θ). Варьированием n , H , λ , Θ чувствительность мод может целенаправленно изменяться.

9. При измерении проводимости жидкости предпочтительным является фазовый отклик нормальных волн как имеющий с ней однозначную функциональную зависимость, а при измерении вязкости жидкости – амплитудный отклик волн как наименее зависящий от температуры. Температурная чувствительность нормальных волн в присутствии жидкости отличается от таковой для пластины без жидкостной нагрузки.

10. Разработан, изготовлен и испытан лабораторный макет датчика вязкости, нечувствительный к электропроводности жидкости.

11. Разработан, изготовлен и испытан лабораторный макет акустоэлектронного датчика для одновременного измерения вязкости, электрической проводимости и температуры жидкости микролитрового объема. Благодаря отсутствию чувствительных покрытий датчик обладает высокой долговременной стабильностью, а результаты измерений – высокой повторяемостью. Благодаря малому проникновению зондирующих волн в пробу по сравнению с ее толщиной форма пробы и ее точный объем не влияют на результаты измерений.

12. Разработан, изготовлен и испытан лабораторный макет акустоэлектронного датчика для распознавания жидких веществ. Не имея чувствительных покрытий, датчик позволяет различать жидкости по их физическим свойствам, получать акустические «изображения» вкуса и устанавливать соответствие продуктов и их сортов заданному стандарту. Датчик обладает высокой долговременной стабильностью, а результаты измерений – высокой повторяемостью. Форма и точный объем жидкостной пробы не влияют на результаты измерений.

СПИСОК РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

- A1. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.**, Земляницын, М.А., Кузнецова И.Е., Пятайкин И.И. Особенности возбуждения и распространения акустических пластинчатых мод в пьезоэлектрических пластинах. // Радиотехника и Электроника. 2013. Т. 58. № 10. С. 1033-1039.
- A2. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.**, Кузнецова И.Е., Пятайкин И.И. Особенности применения акустических пластинчатых мод высших порядков для акустоэлектронных сенсоров. // Известия РАН. Серия Физическая. 2015. Т.79. № 10. С. 1437-1441.
- A3. Anisimkin V.I., **Voronova N.V.**, Pyataikin I.I. Propagation of the Anisimkin Jr. and Quasi-Longitudinal Acoustic Plate Modes in Low-Symmetry Crystals of Arbitrary Orientation. // IEEE Trans. 2012. Vol. UFFC-59. no. 4. P. 806-810.
- A4. Anisimkin V.I., **Voronova N.V.** Acoustic Properties of the Film/Plate Layered Structure. // IEEE Trans. 2011. Vol. UFFC-58. no. 3. P. 578-584.
- A5. Verona E., Anisimkin V.I., Osipenko V.A., **Voronova N.V.** Quasi longitudinal Lamb acoustic modes along ZnO/Si/ZnO structures.// Ultrasonics. 2017. Vol. 76. no. 4. P.227-233.
- A6. Анисимкин В.И., Верона Е., **Воронова Н.В.** Чувствительный элемент для акустического жидкостного сенсора. Заявитель и патентообладатель Российская Федерация, ИРЭ им В.А. Котельникова РАН - RU2632575C1, заявл. 25.05.2016, опубл. 06.10.2017, Бюл. № 28.
- A7. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.**, Земляницын М.А. Пятайкин И.И. Шихабудинов А.М. Структура акустических мод в пьезоэлектрических пластинах со свободными и металлизированными поверхностями. // Радиотехники и Электроника. 2012. Т. 57. № 7. С. 808-812.
- A8. Anisimkin V.I., Anisimkin I.V., **Voronova N.V.**, Puchkov Yu.V. General properties of the acoustic plate modes at different temperatures. // Ultrasonics. 2015. Vol. 62. no. 9. P.46-49.
- A9. Анисимкин В.И., Пятайкин И.И., **Воронова Н.В.**, Пучков Ю.В. Температурные характеристики акустических мод в пластинах пьезоэлектрических кристаллов SiO_2 , LiNbO_3 , LiTaO_3 , $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ и $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$. // Радиотехника и Электроника. 2016. Т.61. № 1. С. 83-88.

- A10. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.**, Галанов Г.Н. Детектирование жидкостей акустическими пластинчатыми модами квазипродольного типа. // Радиотехника и Электроника. 2010. Т. 55. № 9. С. 1121-1125.
- A11. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.** Акустические волны для измерения параметров жидкости в одной области микропробы жидкости. // Нелинейный Мир. 2011. Т. 9. № 2. С. 116-118.
- A12. **Воронова Н.В.**, Анисимкин В.И. Трехпараметрический датчик жидкости на основе поверхностных и пластинчатых акустических волн.// Нелинейный Мир. 2017. Т. 14. № 1. С.48-50.
- A13. **Воронова Н.В.**, Анисимкин В.И.. Интегральная решетка акустических датчиков для приборов «электронный язык». // Нелинейный Мир. 2017. Т. 15. № 2. С.5-11.
- A14. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.** Интегральная решетка акустических датчиков для распознавания жидкостей микролитрового объема. // Известия РАН. Серия физическая. 2017.
- A15. Анисимкин В.И., **Воронова Н.В.** Гибридный акустический сенсор системы электронный нос и электронный язык. Заявитель и патентообладатель Российская Федерация, ИРЭ им В.А. Котельникова РАН - RU2649217C1, заявл. 24.03.2017, опубл. 30.03.2018, Бюл. №10.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Малов В.В. Пьезорезонансные датчики. // Изд-во Энергоатомиздат. М. 1989, 272 с.
2. Фрайден Дж. Современные датчики. Справочник. // Изд-во Техносфера. М. 2006, С.592 .
3. О.Л. Балышева. Акустоэлектронная компонентная база // Журнал Радиоэлектроники № 6, 2014 (<http://www.cplire.ru>).
4. Малов В.В. Разработка и исследование частотных датчиков механических величин на основе управляемых пьезоструктур. // Автореферат дис. Канд.техн.наук. М., 1971.
5. Bryant A., Lee D.L., Vetelino J.F.//Proceedings 1981 IEEE Ultrason.Symp. 1981. P.171-174
6. D'Amico A., Palma A., Verona E. Palladium-surface acoustic wave interaction for hydrogen detection. // Appl. Phys. Lett. 1982. Vol. 41. P.300-304.
7. Anisimkin I.V. New type of an acoustic plate modes: quasi-longitudinal normal wave // Ultrasonics. 2004. Vol. 42. no. 10. P. 1095-1099.
8. Gulyaev Yu.V. Properties of the Anisimkin Jr.' modes in quartz plates // IEEE Trans. 2007. Vol. UFFC-54. no. 7. P. 1382-1385.

9. Gulyaev Yu.V. Peculiarities of the Anisimkin Jr.' plate modes in LiNbO_3 and Te single crystal // IEEE Trans. 2009. Vol. UFFC-56. no. 6. P. 1042-1045.
10. Onoe M., Kaga S. Analytical study of Anisimkin's (Quazilongitudinal) modes in piezoelectric plates. // 2010 IEEE International Frequency Control Symposium, New Port Beach, California – June 2-4, 2010, paper ID 6041.
11. Adler E.L., Slaboszewics J.K., Farnell G.W., Jen C.K. PC software for SAW propagation in anisotropic multi-layers. // IEEE Trans. 1990. Vol. UFFC-37. no. 9. P. 215-220.
12. Slobodnik A.J., Jr., Conway E.D., Delmonico R.T. // Microwave Acoustic Handbook. AFCRL-TR-73-0597, 1973.
13. Weast R.C., Ed. // Chemical Rubber Company Handbook of Chemistry and Physics. 66th ed. Boca Raton, FL: Chemical Rubber. 1985. P. D-232. P. D-254.
14. Anisimkin V.I. General properties of the Anisimkin Jr. plate modes // IEEE Trans. 2010. Vol. UFFC-57. no. 9. P. 2028-2034.