第 19 卷 第 10 期
2011 年 10 月

光学 精密工程
Optics and Precision Engineering

Vol. 19 No. 10
Oct. 2011

文章编号 1004-924X(2011)10-2457-07

Love 波传感器的性能分析与实验

苗 圃[1,2*],李 锋[1],张 平[1],刘永顺[1,2],毕晓猛[1,2],吴一辉[1,3]

(1. 中国科学院 长春光学精密机械与物理研究所 应用光学国家重点实验室,吉林 长春 130033;
2. 中国科学院 研究生院,北京 100049;3. 中国科学院 苏州生物医学工程技术研究所,江苏 苏州 215163)

摘要:为了制作高灵敏度 Love 波传感器,分析了 Love 波在 ST-石英和二氧化硅薄膜分层结构中的传播特性,并对该分层结构进行了相关的理论推导和计算。首先,从声学动力学方程出发,分析求解了该分层结构的波动方程,得到了在该分层结构的色散关系及位移表达式。基于得到的解析表达式分析了波结构,绘制了特性曲线,得到了 Love 波在该结构中的传播特性。最后,应用 MEMS 工艺制作了由 ST-石英为基底、二氧化硅为波导层的 Love 波传感器,并通过电化学微电铸的方法进行了实验验证,且对理论灵敏度与实验灵敏度之间不一致的原因进行了分析。测试数据显示,该传感器的质量灵敏度为 100 cm^2/g,最低检出限为 3.65 ng,结果证明了该 Love 波传感器基本满足高灵敏度生化检测的要求。

关 键 词:Love 波传感器;色散曲线;质量灵敏度;循环伏安法

中图分类号:TP212.1 **文献标识码**:A **doi**:10.3788/OPE.20111910.2457

Performance analysis and experiment of Love wave sensor

MIAO Pu[1,2*], LI Feng[1], ZHANG Ping[1], LIU Yong-shun[1,2], BI Xiao-meng[1,2], WU Yi-hui[1,3]

(1. *State Key Laboratory of Applied Optics, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun* 130033, *China*;
2. *Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing* 100039, *China*;
3. *Suzhou Institute of Biomedical Engineering and Technology, Chinese Academy of Sciences, Suzhou* 215163, *China*)
* *Corresponding author, E-mail: miao-pu@yeah.net*

Abstract: In order to obtain a high sensitive Love wave mass sensor, the Love wave propagation characteristics in a layered structure consisting of a ST-quartz and a silica were investigated theoretically and experimentally on the basis of acoustic dynamics, the wave equation for the layered structure was analyzed and its displacement and the dispersion curves were obtained by calculation. According to the computing results, a Love wave sensor with a SiO_2 waveguide layer was designed and fabricated on a ST-quartz substrate by MEMS processes and its sensitivity was tested by electro-deposition experiment. The results indicate that the mass sensitivity of the device is 100 cm^2/g and the detection limit is 3.65 ng, which meets the demand of biochemical detection for higher sensitivity basically.

Key words: Love wave mass sensor; dispersion curve; mass sensitivity; cyclic voltammetry

收稿日期:2010-10-14;**修订日期**:2011-01-29.

基金项目:国家自然科学基金资助项目(No. 60871043&60971025);江苏省科技支撑计划工业类资助项目(No. BE2009060);中科院知识创新重要方向性资助项目(No. KGCX2-YW-913-1);国家重点基金(No. 11034007)

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

1 引 言

近年来，随着人们对环境监测，食品检验和生化测试等领域的关注不断提高，生物传感器作为其中的重要组成部分日益受到了重视。按照传感原理，生物传感器可分为声波传感器，光纤化学传感器[1-5]，表面等离子体波共振传感器[6-7]和电化学生物传感器[8]等类型。其中，声波传感器具有响应速度快，灵敏度高，体积小，直接输出信号，可与集成电路集成制作等优点，因而应用前景广泛。

按照激发波型的不同，声波传感器又可分为Love波生物传感器[9-10]，Lamb波生物传感器[11-12]和TSM(Thickness-shear Mode)生物传感器[13]等类型。TSM生物传感器一般是指石英晶体微天平(Quartz Crystal Microbalance, QCM)。理论上，QCM的灵敏度低于Love波传感器的灵敏度，而且由于QCM灵敏度越高，要求基片的厚度就越小，因此造成了结构不够稳固的缺点。Lamb波生物传感器的理论灵敏度比Love波生物传感器的灵敏度高，并且由于使用的波型在液体中形成消逝场，故也同样适用于液相检测。但是Lamb波传感器的制作工艺复杂并且在提高灵敏度的同时也要降低薄膜的厚度，所以在耐用性上差一些。基于上述考虑，Love波生物传感器成为了研究的热点。在国外，剑桥大学学者Gizeli等[9]人于1992年报道了第一个Love波生物传感器，该传感器由ST-石英基底和PMMA薄膜组成。1994年Z. Wang和J. D. N. Cheeke[14]利用扰动理论得到了在各向同性基底上覆盖一层各向同性波导层时的理论灵敏度公式。之后Du J和Harding G. L等[15]人实际制作了Love波生物传感器并得到了与理论灵敏度相接近的实验结果。国内的单位如清华大学[16]和中科院长春光机所[17-18]等也对Love波生物传感器做了相关的研究。

目前对Love波传感器在液相加载状态下的质量灵敏度表征的研究较少，国外学者J.-M. Friedt虽然做了相关的工作[19]，但是未作理论和质量灵敏度误差方面的分析。

本文通过对ST-石英基底和二氧化硅薄膜的分层机构进行理论分析得出了Love波在该器件中的波结构和色散特性，进而计算出该器件的理论灵敏度。利用电化学方法，对传感器质量灵敏度进行标定，并对测量灵敏度低于理论灵敏度的现象进行了分析。

2 理论分析[20]

在半无限大的ST-石英基底上覆盖一层二氧化硅，结构如图1所示。

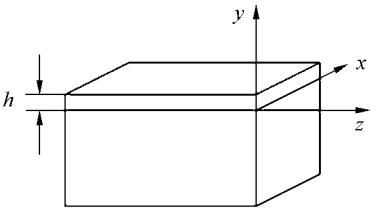


图1 石英基底和二氧化硅组成的分层结构

ig. 1 Layered structure consisting of quartz and SiO_2

由于石英是弱压电单晶，故此处分析不考虑压电效应。仅考虑水平切向位移，设石英基底和二氧化硅层内的位移分别为 $\boldsymbol{u}_q$，$\boldsymbol{u}_s$，其中标记“q”表示石英基底，标记“s”表示二氧化硅层，位移分量分别为 $\boldsymbol{u}_q=[u_{qx}, 0, 0]^T$，$\boldsymbol{u}_s=[u_{sx}, 0, 0]^T$。由动力学方程可得石英基底内的波动方程为：

$$C_{q_{55}}\frac{\partial^2 u_{qx}}{\partial z^2}+2C_{q_{56}}\frac{\partial^2 u_{qx}}{\partial z\partial y}+C_{q_{66}}\frac{\partial^2 u_{qx}}{\partial y^2}=\rho q\frac{\partial^2 u_{qx}}{\partial t^2}\ , \tag{1}$$

其中，$C_{q_{55}}$，$C_{q_{56}}$ 和 $C_{q_{66}}$ 表示石英基底旋转坐标系之后的弹性常数，表示石英基底的密度。

二氧化硅层内的波动方程为：

$$C_{s_{44}}\Delta u_{sx}=\rho s\frac{\partial^2 u_{sx}}{\partial t^2}\ , \tag{2}$$

其中，$C_{s_{44}}$ 表示二氧化硅层的弹性常数，ρ_s 表示二氧化硅层的密度，Δ 表示拉普拉斯算子。

石英基底内的剪切应力为：

$$T_{q_{xy}}=C_{q_{56}}\frac{\partial u_{qx}}{\partial z}+C_{q_{66}}\frac{\partial u_{qx}}{\partial y}\ . \tag{3}$$

二氧化硅层内的剪切应力为：

$$T_{s_{xy}}=C_{s_{44}}\frac{\partial u_{sx}}{\partial y}\ . \tag{4}$$

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

当分层结构如图 1 所示时，边界条件可以如下述表示。

当 $y \to -\infty$ 时，$u_{qx} \to 0$。

在 $y=0$ 处：

$$u_{sx} = u_{qx}, \tag{5}$$

$$T_{s_{xy}} = T_{q_{xy}}, \tag{6}$$

在 $y=h$ 处：

$$T_{s_{xy}} = 0. \tag{7}$$

将方程(1)、(2)和上述边界条件联立求解可得在石英基底和二氧化硅层中的位移场表达式分别为：

$$u_{sx} = C_1[\tan(D_1 \times h)\sin(D_1 y) + \cos(D_1 y)] \times e^{i(\omega t - kz)}, \tag{8}$$

$$u_{qx} = C_1 e^{(i \times C_{q_{56}} \times k + \sqrt{D_2}) \times y / C_{q_{66}}} e^{i(\omega t - kz)}. \tag{9}$$

令 $x = h/\lambda$，$v = \omega/k$，则 Love 波色散关系可写为：

$$\tan\left(2 \times \pi \times \sqrt{\rho_s \times v^2 / C_{s_{44}} - 1} \times x\right) - \frac{\sqrt{C_{q_{55}} \times C_{q_{66}} - \rho_q \times C_{q_{66}} \times v^2 - C_{q_{56}}^2}}{\sqrt{\rho_s \times v^2 \times C_{s_{44}} - C_{s_{44}}^2}} = 0. \tag{10}$$

至此得到 Love 波的位移场以及色散曲线表达式。下一步对 Love 波的色散特性及相关特征情况进行数值计算。

3　数值计算

通过对 ST-石英基底上覆盖一层二氧化硅薄膜的分层结构进行计算，可以得到 Love 波的传播特性以及将其用于生物传感测试时的参数估计。

根据色散关系式(10)可得在分层结构中的色散曲线如图 2 所示。图中归一化厚度定义为二氧化硅层的厚度 h 与 Love 波波长 λ 之比即 h/λ。由图中可以看出，随着归一化厚度的增加，Love 波的相速度逐渐减小，范围从基底的水平剪切波速逐渐变化至薄膜层的水平剪切波速。

利用质量灵敏度公式 $S_m = -1/2M_s$ 得到图 3 所示传感器的理论质量灵敏度，其中 M_s 为参与振动的基底与薄膜质量。随着归一化厚度的增加，质量灵敏度由小增大至最大值，此时 $h/\lambda = 0.17$，最大灵敏度为 $S_m = -116.4\ cm^2/g$。而后灵敏度开始逐渐减小，并且有零阶模式的灵敏度始终高于一阶模式的灵敏度。

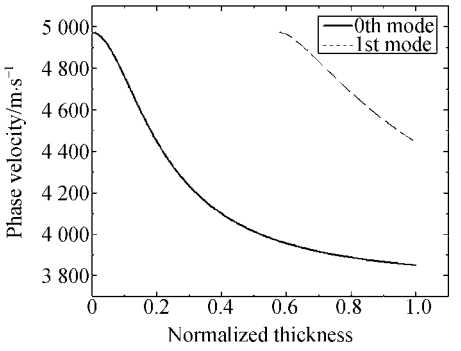


图 2　Love 波在 ST-石英和二氧化硅分层结构中的色散曲线

Fig. 2　Dispersion curves of Love wave in the layered structure

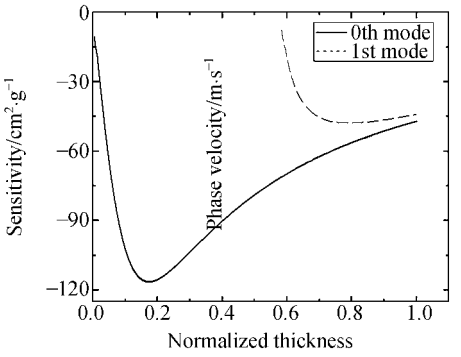


图 3　Love 波生物传感器的质量灵敏度曲线

Fig. 3　Mass sensitivity curves of Love wave biosensor

4　器件制作

将石英晶片采用 SPM 清洗工艺洗净后，应用剥离工艺在晶片表面制作上金属叉指电极，然后采用等离子体增强化学相沉积(PECVD)工艺在其上制作二氧化硅薄膜，最后使用划片机分离器件，准备进行实验测试。制作完成的器件截面如图 4 所示。

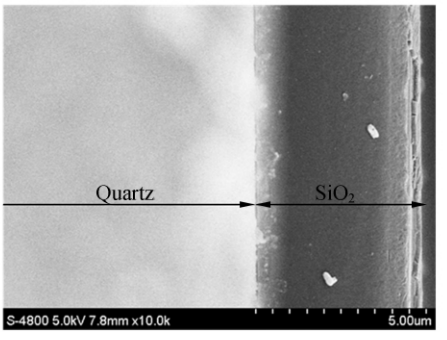


图 4　Love 波传感器截面图

Fig. 4　Section figure of Love wave sensor

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

5 实验分析

利用微机械工艺制作完成的 Love 波传感器波长为 40 μm，薄膜厚度为 5 μm，理论灵敏度 $S_m = -111.2\ \mathrm{cm^2/g}$。传感器的实验灵敏度可以通过测试在器件表面附着微小质量引起传感器的谐振频率变化进一步计算得到。采用电化学中的循环伏安法对 Love 波传感器进行质量标定。所用设备为微型电化学系统，其电流分辨率为 100 pA，在本实验中折算质量为 7 pg。实验原理图如图 5 所示。

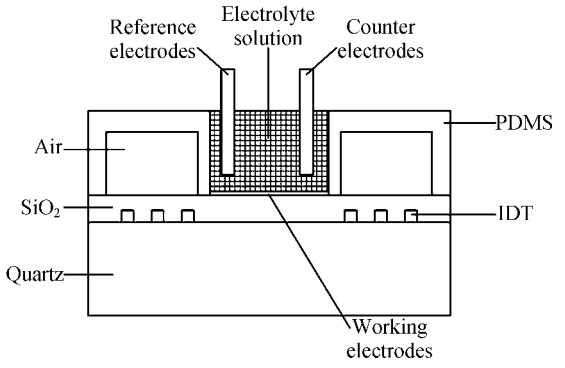


图 5 Love 波传感器微电铸原理图

Fig. 5 Schematic diagram of electro deposition on Love wave sensor

将制作的 Love 波传感器通过聚二甲基硅氧烷(Polydime thyisiloxane，PDMS)进行封装，工作电极为 Au，参比电极为 Ag，对电极为 Cu，电解质溶液由 10^{-2} mol/L 的 $CuSO_4$ 和 10^{-2} mol/L 的硫酸按 1∶1 比例配制。在工作电极与对电极之间加上信号并且将器件与网络分析仪连接，溶液中的电流与 Love 波器件频率改变如图 6 所示。

由图可知，当电流为负值时，器件表面开始铸铜，从而表面质量增加，频率逐渐减小；当电流为正值时，器件表面开始去铜，频率逐渐增大。根据电荷守恒，可得电铸铜质量关系式：

$$m = \frac{M_c}{2 \cdot \mathrm{Na} \cdot \mathrm{e}} \int I \mathrm{d}t \ , \tag{11}$$

式中，M_c 为铜的摩尔质量，Na 为阿伏伽德罗常数，e 为电子电荷，I 为电铸电流，t 为电铸时间。由质量灵敏度公式：

$$\frac{\Delta f}{f_0} = S_m \frac{m}{A} \ . \tag{12}$$

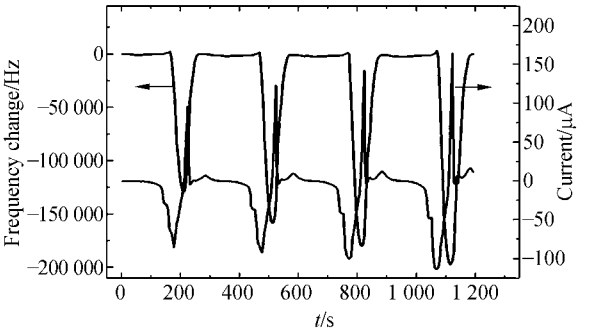


图 6 频率和电流随时间变化关系图

Fig. 6 Relations among frequency change, current and time

式中，Δf 为频率变化，f_0 为谐振频率，S_m 为质量灵敏度，m 为质量变化，A 为传感区面积。计算得出 Love 波传感器的质量灵敏度为 100 $\mathrm{cm^2/g}$。从网络分析仪可以测得器件在谐振频率处的相位噪声约为 300，由此计算出该器件的最低检出限约为 3.65 ng。

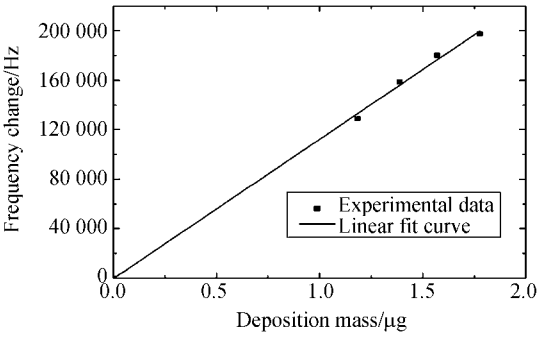


图 7 电铸铜质量与频率变化的关系

Fig. 7 Relation between copper mass and frequency change

图 7 所示为实验中器件表面沉积的质量与频率变化之间的关系。由图示可知实验结果具有良好的线性关系，并且与原点误差较小(6.31 kHz)，根据质量灵敏度公式(12)可知实验结果的正确性。

实验结果表明，理论灵敏度与实际灵敏度之间有一些偏差，其原因分析如下：

实验通过循环伏安法在器件表面电铸铜来表征质量灵敏度时，会引入误差，因为铜刚度不能忽略使得波导层质量增加，即增加了参与振动的质量。同理，波动在液体中传播也使得质量增加，由此质量灵敏度公式变为：

$$S_m = -\frac{1}{2(M_s + \rho_c h_c + \rho_l h_l)} \ , \tag{13}$$

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

其中 $\rho_c h_c$ 为铜的单位面积质量，$\rho_l h_l$ 为参与振动的液体单位面积质量。

由此可知其它参数不变时：

（1）当二氧化硅的膜厚减小 0.1 μm，灵敏度减小 0.64 cm^2/g，二氧化硅密度增加 0.1 g/cm^3，灵敏度减小 4.2 cm^2/g。

（2）由于铜的附着使得表面质量增加，实验中电铸铜质量为 1.777 μg，因此灵敏度减小 0.45 cm^2/g。

（3）由于液体加载从而引起波动在液体中有一定穿透，电解液 ρ_l 为 1.019 g/cm^3，穿透深度 h_l[21] 为 0.131 μm，灵敏度因此减小 3.63 cm^2/g。

（4）电铸铜的表面粗糙不平，导致波动在液体中的穿透深度增加，从而使灵敏度下降了 0.05 cm^2/g。

综上所述，器件材料的参数、电铸金属层的性质、电解液的密度和粘度以及金属层表面的粗糙度等因素均会使传感器的质量灵敏度发生偏差，在上述条件下误差累计为 3.21%。故应对上述因素预先考虑以获得高质量的传感器。

6　结　论

对由 ST-石英和二氧化硅薄膜构成的分层结构进行了理论分析，并得到了该结构内 Love 波的解析表达形式。通过数值计算得到了关于该分层结构的色散曲线，灵敏度特性及有关 Love 波位移场的特性曲线，给出了相关特性的分析过程，为器件的制作提供了理论依据。根据分析结果，当归一化厚度 $h/\lambda=0.17$ 时，理论灵敏度达到最大值 $S_m=-116.4$ cm^2/g。微电铸实验表明，制作的传感器灵敏度为 100 cm^2/g，最低检出限约为 3.65 ng。该 Love 波传感器基本满足进行生化检测的要求[21]。

7　致　谢

感谢中科院长春应化所夏勇副研究员提供的设备和技术支持。

参考文献：

[1] PHILIP H P, GEORGE K. Fiber-optic evanescent field absorption sensor [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1987, 51(1):12-14.

[2] SAFAAI-JAZI A, PETERSEN J V. Evanescent field fiber-optic chlorine sensor [J]. *Optical & Laser Technology*, 1994, 26(6):399-402.

[3] 桑新柱，余重秀，颜玢玢，等. 基于光纤布拉格光栅的化学传感器[J]. 光学 精密工程，2006，14(5)：771-774.
SANG X ZH, YU CH X, YAN B B, *et al.*. Chemical sensor based on a fiber Bragg grating [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2006, 14(5): 771-774. (in Chinese)

[4] 高术，戴长生，吴冠英. 时间分辨荧光光纤生物传感器的研制及应用[J]. 光学 精密工程，2000，8(2)：169-173.
GAO SH, DAI CH SH, WU G Y. Development and application of time-resolved fluorescence optical fiber biosensor [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2000, 8(2): 169-173. (in Chinese)

[5] 庄须叶，吴一辉，王淑荣，等. 新结构 D 形光纤消逝场传感器[J]. 光学 精密工程，2008，16(10)：1936-1941.
ZHUANG X Y, WU Y H, WANG SH R, *et al.*. Optical fiber evanescent field sensor based on new type D-shaped fiber [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2008, 16(10):1936-1941. (in Chinese)

[6] LIEDBERG B, NYLANDER C, LUNDSTROM I. Surface-plasmon resonance for gas-detection and biosensing[J]. *Sensors and Actuators*, 1983, 4: 299-304.

[7] LIEDBERG B, NYLANDER C, LUNDSTROM I. Biosensing with surface plasmon resonance-how it all started[J]. *Biosensors and Bioelectronics*, 1995, 10: *i-ix*.

[8] CLARK L C, LYONS C. Electrode systems for continuous monitoring in cardiovascular surgery [J]. *Ann. NY Acad. Sci.*, 1962, 102:29-45.

[9] GIZELI E, STEVENSON A C, GODDARD N J, *et al.*. A novel Love-plate acoustic sensor utilizing polymer overlayers [J]. *IEEE Transducers on Ultrasonics, Ferroelectric and Frequency Control*,

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

1992, 39(5):657-659.

[10] KOVACS G, VELLEKOOP J, HAUEIS R, *et al*.. A Love wave sensor for (bio) chemical sensing in liquids [J]. *Sensors and Actuators A*, 1994, 43: 38-43.

[11] WENZEL S W, WHITE R M. Flexural plate-wave sensor: chemical vapor sensing and electrostrictive excitation [J]. *Proceedings of IEEE Ultrasonics Symposium*, 1989: 595-598.

[12] TESTON F, FEUILLARD G, LETHIECQ M. Propagation of Lamb waves in 1-3 piezocomposite bordered by liquids [A]. *Proceedings of the Annual IEEE International Frequency Control Symposium*, 1999, 2: 1066-1069.

[13] KONASH P L, BASTIAANS G J. Piezoelectric crystals as detectors in liquid chromatography [J]. *Anal. Chem.*, 1980, 52(12):1929-1931.

[14] WANG Z, CHEEKE J D N. Sensitivity analysis for Love mode acoustic gravimetric sensors [J]. *Appl. Phys. Let.*, 1994, 64(22):2940-2942.

[15] DU J, HARDING G L, OGILVY J A, *et al*.. A study of Love-wave acoustic sensors [J]. *Sensors and Actuators A*, 1996, 56: 211-219.

[16] 潘海峰,朱惠忠,冯冠平. 适合于液相检测的乐甫波传感器[J]. 仪表技术与传感器,2003,3:10-12.
PAN H F, ZHU H ZH, FENG G P. Love wave sensor for being fit for operating in liquids [J]. *Instrument Technique and Sensor*, 2003, 3: 10-12. (in Chinese)

[17] 史建亮,胡友旺,贾宏光,等. 液相检测的 Love 波传感器的制作与研究[J]. 压电与声光,2007,29(5):533-536.
SHI J L, HU Y W, JIA H G, *et al*.. Fabrication and research of Love wave sensor operating in liquid media [J]. *Piezoelectrics & Acoustooptics*, 2007, 29(5): 533-536. (in Chinese)

[18] 胡友旺,史建亮,贾宏光,等. Love 波传感器及其质量灵敏度测试[J]. 传感技术学报,2006,19(05B):2126-2129, 2134.
HU Y W, SHI J L, JIA H G, *et al*.. Love wave sensor and measurement of mass sensitivity [J]. *Chinese Journal of Sensors and Actuators*, 2006, 19(5): 2126-2129, 2134. (in Chinese)

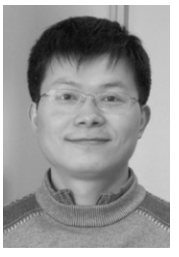
[19] FRIEDT J M, FRANCIS L, CHOI K H, *et al*.. Combined atomic force microscope and acoustic wave devices: application to electrodeposition [J]. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 2003, 21(4):1500-1505.

[20] AULD B A. *Acoustic Fields and Waves in Solids* [M]. 1st ed.. New York: Wiley, 1973.

[21] BALLANTINE D S, WHITE R M, MARTIN S J, *et al*.. *Acoustic Wave Sensors: Theory, Design, and Physico-chemical Applications* [M]. New York: Academic Press, 1997.

作者简介:

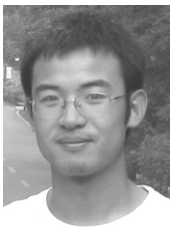
苗 圃(1982—),男,河南周口人,博士研究生,2004年于郑州航空学院获得学士学位,2007年于中科院长春光学精密机械与物理研究所获得硕士学位,主要研究方向为集成微光机电系统。E-mail:miao_pu@yeah.net



李 锋(1978—),男,湖北黄冈人,博士,副研究员,主要从事微光机电系统方面的研究。E-mail:lif@ciomp.ac.cn

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

刘永顺(1982－)，男，吉林长春人，助理研究员，2005 年于吉林大学获得学士学位，主要研究方向为 MEMS 微加工工艺。E-mail：liuyongshun@hotmail.com



毕晓猛(1986－)，男，山东济南人，硕士研究生，2009 年于青岛大学获得学士学位，主要研究方向为声波生物传感器。E-mail：bi_xiaomeng@hotmail.com

导师简介：

吴一辉(1965－)，女，浙江温州人，研究员，博士生导师，1996 年于中国科学院长春光学精密机械与物理研究所获得博士学位，主要研究方向为微机电系统。E-mail：yihuiwu@ciomp.ac.cn

张　平(1958－)，女，吉林长春人，副研究员，硕士生导师，1982 年于吉林大学获得学士学位，主要研究方向为硅与非硅 MEMS 工艺技术。E-mail：zhangpingres@163.com

●下期预告

亚毫米尺度磁流体波导窄带滤波特性的研究

袁　文，桑明煌，郭　琴，况庆强

（江西师范大学 物理与通信电子学院，江西 南昌 330022）

为研究磁流体的窄带滤波特性，利用了一种样品空间层达亚毫米尺度的双面金属波导，将磁流体注入波导样品空间层作为导波层。实验研究中，首先将波长为 1 550 nm 激光入射到波导表面，选择合适的入射光导模共振角，激发波导中的超高阶导模，使纳米磁流体处于光波导的振荡场中；然后，应用超高阶导模的高灵敏度特点，施加磁场在波导上，磁场作用改变磁流体的折射率，导致波导耦合效率的变化，通过接收波导反射光，得到波导的窄带滤波特性。实验中测试的入射光波长调谐范围从 1 549.440～1 549.585 nm，得到的窄带滤波带宽为 0.06 nm。对于 1 549.516 nm 波长，当所加磁场从 0 变化至 652 Oe 时，获得反射光的变化达到 11.9 dB。实验结果表明，该方法获得的滤波特性具有带宽窄、灵敏度高的特点。

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net