АКУСТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ

Том 38 1992 Вып. 3

УДК 534.222.2

© 1992 г. Л.М. Дорожкин, В.С. Дорошенко, А.А. Карабутов, В.В. Лазарев, М.П. Матросов, Э.Д. Польских, Б.А. Чаянов

ПЬЕЗОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ПРИЕМНИК АКУСТИЧЕСКИХ ИМПУЛЬСОВ НА ОСНОВЕ НОВОГО ПЛЕНОЧНОГО ТЕКСТУРИРОВАННОГО МАТЕРИАЛА

Сообщается о создании широкополосного приемника акустических импульсов на основе вновь разработанного пленочного пьезоэлектрического текстурированного материала. Исследования характеристик приемника проведены с применением оптико-акустического способа возбуждения калиброванных импульсов. Установлено, что чувствительность приемников составляет 1 мкВ/Па в диапазоне давлений $10^4 \ldots 10^7$ Па. Их инерционность позволяет воспроизводить акустические фронты длительностью не более 10 нс. Показано, что новый пленочный пьезоматериал превосходит свои аналоги по целому ряду характеристик.

Неотъемлемой частью экспериментальной базы оптико-акустических (ОА) исследований являются средства измерения характеристик коротких акустических импульсов. Накопившийся к настоящему времени опыт экспериментальных исследований свидетельствует о том, что развитие импульсной ОА спектроскопии [1, 2], дефектоскопии [3, 4], прогресс в области изучения ряда аспектов взаимодействия лазерного излучения с веществом [5, 6] и других областях науки, использующих акустическую диагностику, главным образом связан с использованием средств измерения амплитуд и профилей импульсов с характерными давлениями $p \sim 10^4 - 10^8$ Па, длительностями $\tau_и \sim 10$ нс и апертурами пучков от долей мм^2 до см^2. При этом следует иметь в виду, что все возрастающий объем ОА исследований и наметившаяся перспектива их практического приложения выдвигает требования доступности, дешевизны и высокой тиражируемости соответствующих средств. Как установлено на практике, в наибольшей степени этим требованиям удовлетворяют пленочные пьезоэлектрические приемники (ПП), действие которых основано на одномерной деформации тонкого слоя пьезоэлектрика. Созданию и изучению приемников такого типа в последнее время уделяется большое внимание [7, 8]. Этой теме посвящена и настоящая работа, в которой сообщается о новом текстурированном пленочном пьезоматериале, создании на его основе пьезоприемников и исследовании их свойств.

Устройство представляемых ПП схематично показано на рис. 1, их внешний вид – на рис. 2. На подложку-звукопровод (*1*) вакуумным напылением последовательно нанесены: нижний пленочный электрод (*2*), пьезоэлектрическая пленка (*3*) и верхний электрод (*4*). Электроды изготавливаются из алюминия, хрома, никеля; их форма может быть выбрана произвольной. К чувствительному элементу ПП присоединена пластина *6* (обычно плавленый кварц), играющая роль демпфера и одновременно защищающая его от механических повреждений. Склейка пластин осуществлена с помощью фотополимеризующейся композиции *5* на основе эпоксиакрилата. Специально разработанная методика позволяет получать высокоадгезивные гомогенные склеивающие слои толщиной около 2 мкм, придающие тем не менее всей конструкции достаточную механическую прочность. Акустический контакт ПП и изучаемого твердотельного объекта рекомендуется осуществлять традиционно: тонким слоем закристаллизованного салола, притертым слоем эпоксидной смолы, глицерина и т.п. Приемник можно

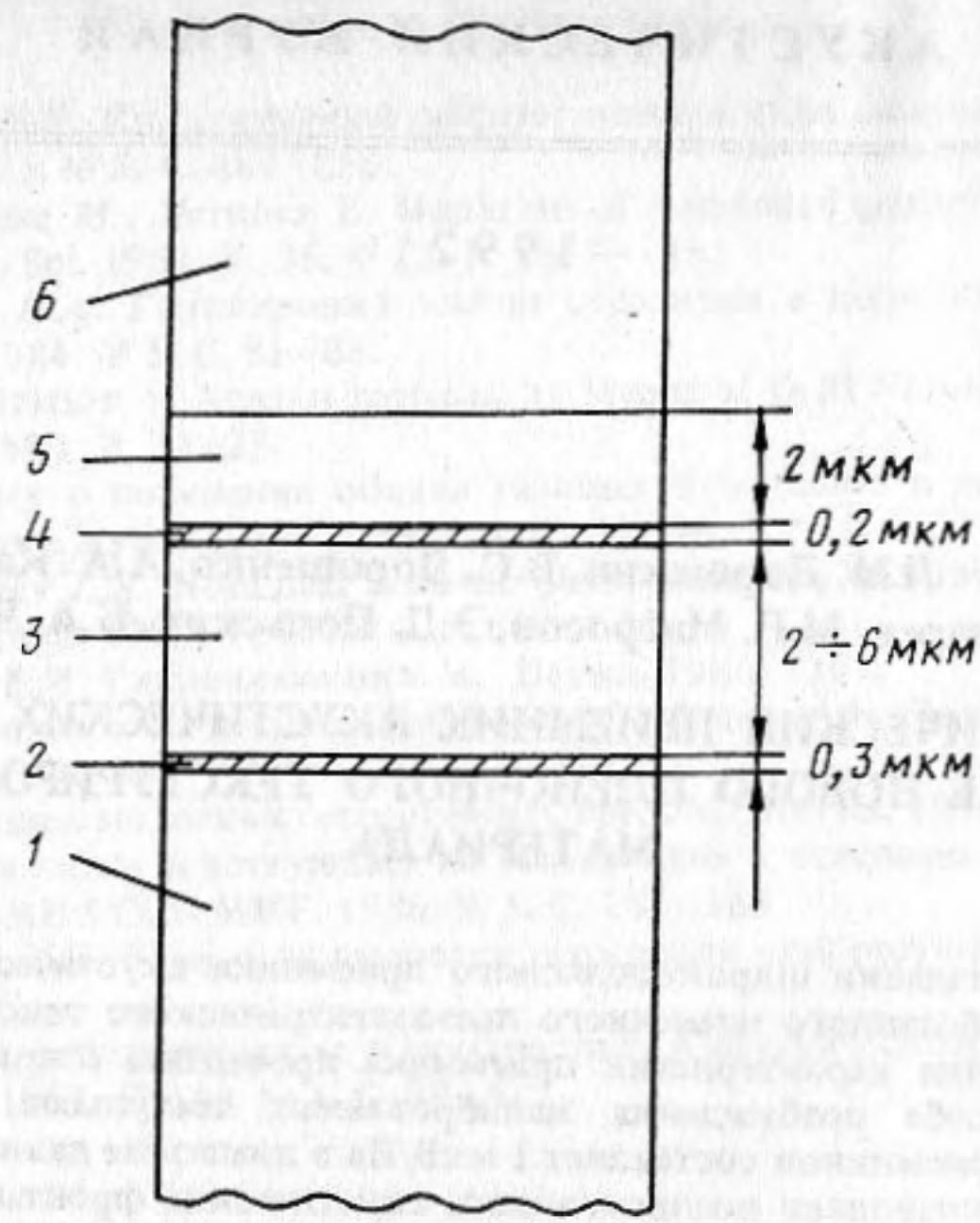

Рис. 1. Устройство пьезоприемника

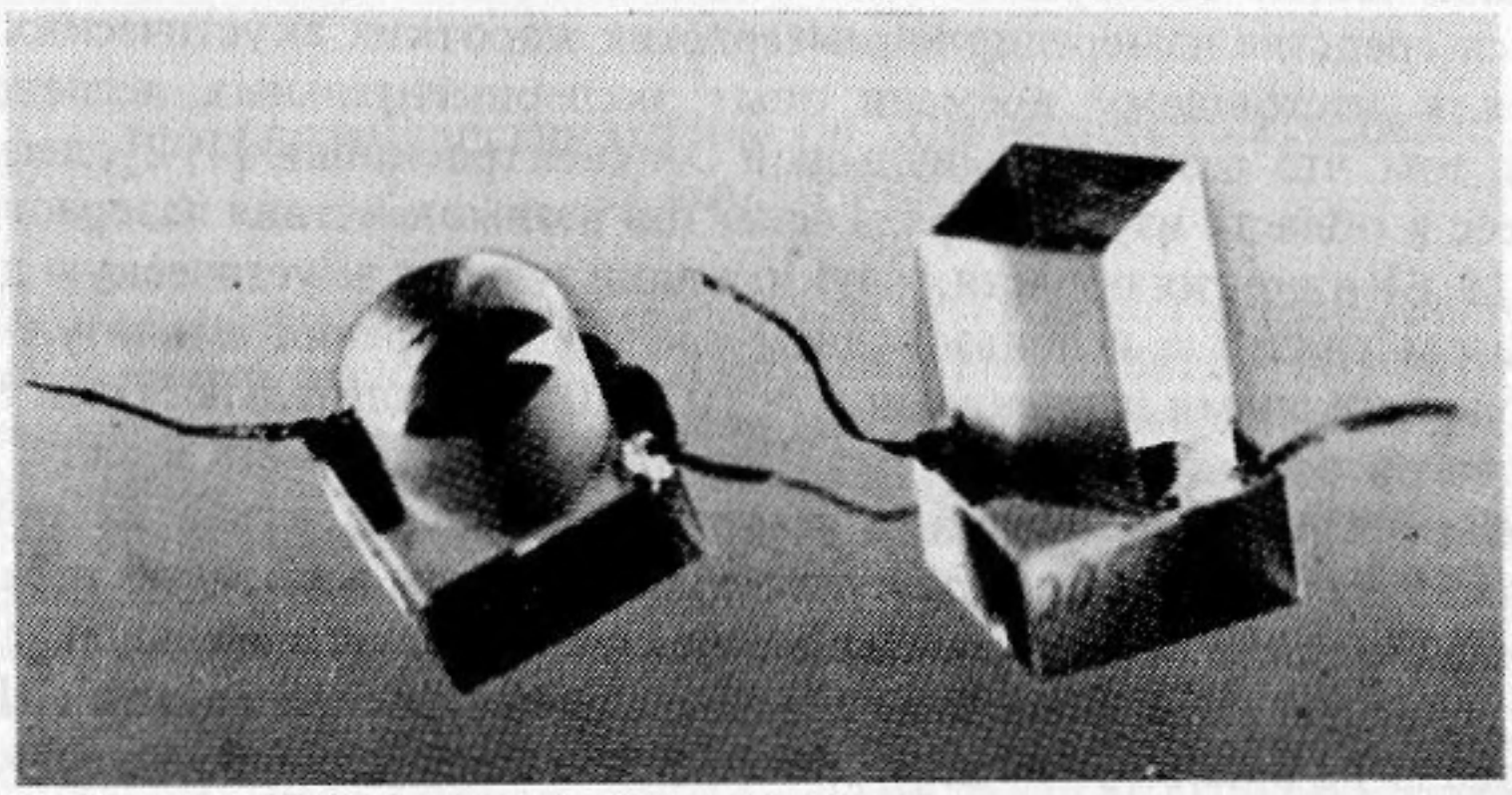

Рис. 2. Внешний вид пьезоприемника

использовать и без демпфера, непосредственно присоединяя его чувствительный элемент через согласующий слой к исследуемому объекту, однако в таком варианте возникают сложности в определении толщины этого слоя, что приводит к трудно предсказуемым изменениям параметров приемника.

Чувствительным элементом ПП является текстурированная пленка органического соединения из класса карбамидов, в дальнейшем условно именуемого КА. По своим морфологическим характеристикам и функциональным проявлениям они аналогичны таким широко распространенным текстурированным пленочным материалам, как CdS, ZnO, AlN [9]. Как показали специально проведенные рентгеноструктурные исследования, в данном случае образуется текстура типа ∞ в обозначениях Шубникова [10]. Такие текстуры имеют пьезотензор, показанный на рис. 3. Здесь ось текстуры направлена, как обычно, вдоль оси *3*. Те же исследования показали, что для представляемых здесь пленок ось текстуры перпендикулярна плоскости подложки. Таким образом,

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & -d_{14} & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Рис. 3. Пьезотензор текстуры КА

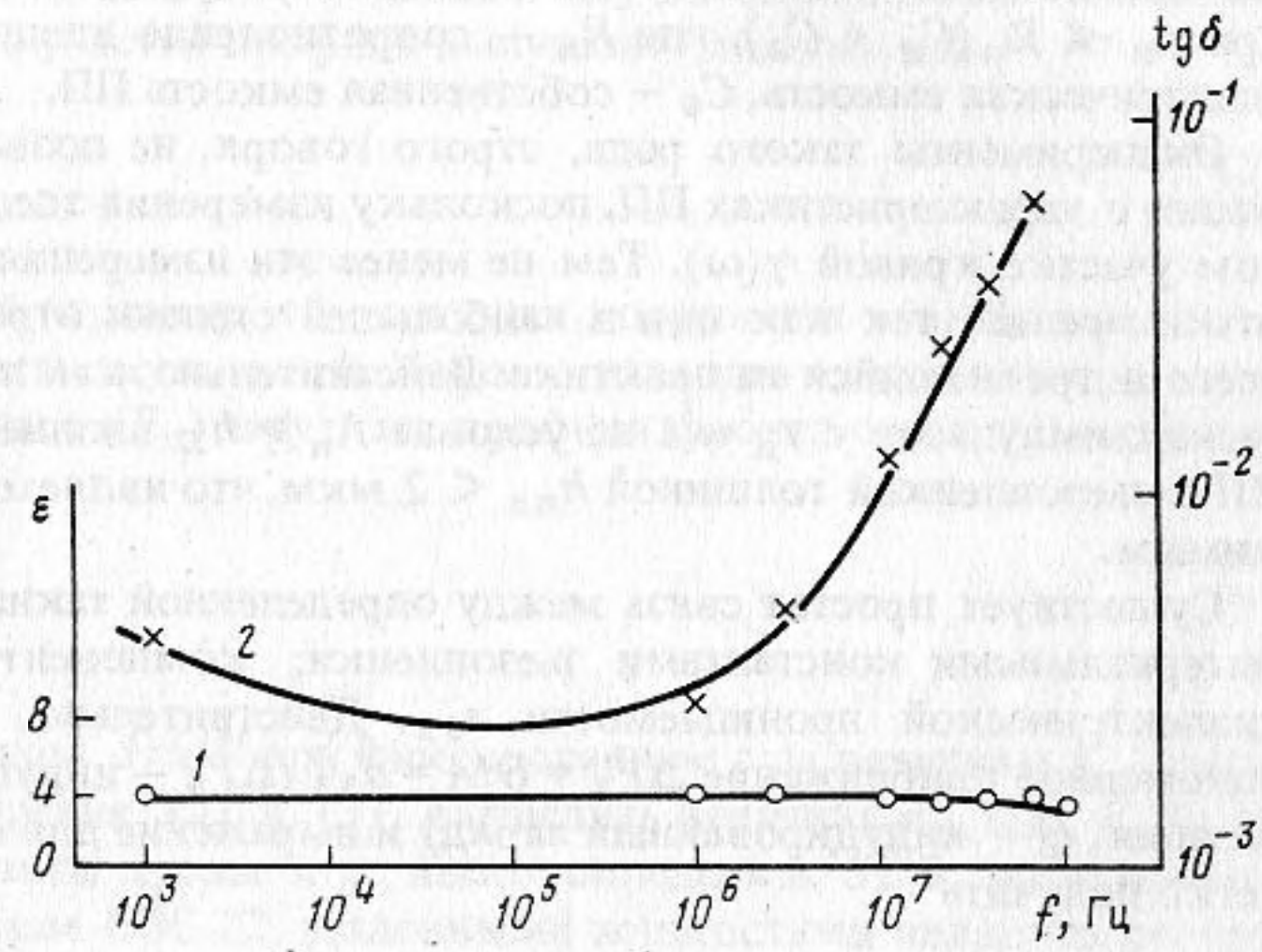

Рис. 4. Частотная зависимость диэлектрической проницаемости ϵ_{33} (*1*) и тангенса угла диэлектрических потерь tg δ (*2*) пленок КА

в соответствии с видом тензора пленки чувствительны к продольным акустическим колебаниям, что и обусловливает их использование в ПП. Отметим, что сами кристаллы КА принадлежат к федоровской группе P1.

Текстурированные пленки КА принципиально могут быть получены на поверхности практически любого твердого материала; кривизна поверхности при этом существенной роли не играет. Здесь необходимо отметить, что для получения качественных, высокоориентированных текстур КА не требуется разогрев подложек либо их термостатирование. Высокая тиражируемость и доступность обсуждаемых ПП обеспечивается применением при их изготовлении групповых методов. Площади пленок КА ограничиваются, вообще говоря, лишь размерами колпака используемой вакуумной установки. В данной работе активная площадь ПП задавалась размерами пересечения нижнего и верхнего электродов и составляла величины A = 1; 2 и 4 мм^2. Нами исследовались пленки с толщинами $h_{пл}$ от 2,5 до 5 мкм; вообще хорошо ориентированные текстуры были получены для пленок, имеющих $h_{пл}$ от 0,25 до 16 мкм.

Плотность пленок КА – 1,5 ±0,15 г/см^3, скорость продольного звука в направлении оси текстуры – 2,2 ±0,2 км/с, удельное сопротивление ~10^{13}–10^{14} Ом·см. Частотная зависимость диэлектрической проницаемости (компонента ϵ_{33}) и тангенса диэлектрических потерь приведены на рис. 4. Здесь следует отметить низкие значения ϵ_{33} и волнового сопротивления и высокие значения удельного сопротивления.

Чувствительность и полоса пропускания ПП – его основные характеристики – могут быть корректно определены только при условии полного восстановления их спект-

ральной чувствительности, которая является сложной функцией акустических сопротивлений пленки, склеивающего слоя, подложки и демпфера, коэффициента электромеханической связи материала пленки [7, 11]. В эксперименте такая зависимость может быть получена сравнением спектров акустического импульса (например, ОА импульса [7]) и импульса ответного напряжения (V), генерируемого ПП. В общем случае такая задача составляет предмет отдельного исследования, она не является для данной работы актуальной. Здесь, как и в [8], авторы ограничились изучением отклика ПП на калиброванные по амплитуде и длительности импульсы давления. В этом случае чувствительность определяется по отношению текущего напряжения к давлению $S = V(\tau)/p(\tau)$. Как правило, измерения проводятся в точке, отвечающей максимумам V и p. Разумеется, измерения такого рода будут адекватно отражать свойства приемников только в том случае, если частотный спектр возбуждающего импульса не выходит за границы полосы пропускания ПП. Самый простой анализ показывает, что это условие выполняется, если справедливо соотношение $\Lambda_и \gg h_\Sigma$, где $\Lambda_и$ – длина волны возбуждающего импульса, h_Σ – суммарная толщина пьезопленки и слоя склейки[1]. Измерения должны естественно выполняться в режиме "регистрации напряжения", т.е. при $\tau_и \ll R_н(C_н + C_0)$, где $R_н$ – сопротивление внешней нагрузочной цепи, $C_н$ – ее электрическая емкость, C_0 – собственная емкость ПП.

Эксперименты такого рода, строго говоря, не позволяют получить полной информации о характеристиках ПП, поскольку измерения здесь проводятся на бездисперсионном участке кривой $\gamma(\omega)$. Тем не менее эти измерения наиболее ценны с утилитарной точки зрения, так как они в наибольшей степени отражают режим работы ПП, чаще всего встречающийся на практике. Действительно, как легко показать, даже для акустических импульсов с $\tau_и \approx 1$ нс условие $\Lambda_и \gg h_\Sigma$ вполне выполнимо, если использовать ПП с пьезопленкой толщиной $h_{пл} < 2$ мкм, что является вполне технологически достижимым.

Существует простая связь между определенной таким образом чувствительностью и материальными константами пьезопленки: компонентой пьезотензора d_{33} и тензора диэлектрической проницаемости ϵ_{33}. Действительно, используя справедливое здесь одномерное приближение $\Delta P_3 = Q/A = d_{33}$ (ΔP_3 – индуцированная электрическая поляризация, Q – индуцированный заряд) и выражение для емкости плоского конденсатора легко получить[2]

$$S = d_{33} h_{пл}/\epsilon_0 \epsilon_{33}. \tag{1}$$

В эксперименте измерения чувствительности ПП и пьезомодуля пленки проводились двумя методами. В первом случае акустические видеоимпульсы калиброванной амплитуды и длительности возбуждались с помощью YAG : Nd^{3+}-лазера в ртути и стекле СЗС-22. С использованием ртути возбуждались акустические импульсы с амплитудой до 50 атм и длительностью около 15 нс. Вследствие слабой зависимости теплофизических характеристик ртути от температуры амплитуда импульсов пропорциональна энергии в лазерном импульсе, а их форма соответствует форме лазерных импульсов. Эти преимущества ртутного генератора оказались решающими при его выборе для использования в исследованиях. Оптико-акустический генератор на основе стекла СЗС-22 возбуждал акустические импульсы длительностью ~100 нс и амплитудой до 50 атм.

Акустический контакт исследуемых ПП и генераторов осуществлялся иммерсионными жидкостями (ртуть, вода). Электрический сигнал регистрировался на осциллографе С9-4А; при этом использовался пробник с входной емкостью не более 10 пФ, что существенно ниже, чем собственная емкость исследованных ПП. Полоса пропускания электрического тракта составляла 100 МГц и была достаточна для регистрации акусти-

---

[1] Скорость звука в пьезопленке и слое склейки приблизительно одинакова.

[2] Строго говоря, это уравнение справедливо для пьезоматериалов с малым коэффициентом электромеханической связи.

Тип пленки	$h_{пл}$, мкм	A, мм^2	S, мкВ/Па	Динамический диапазон, Па	d_{33}, пКл/н	d_{33}/ϵ_{33}	Литература
КА	2,5÷5	1÷16	0,6÷1,2	10^4-10^7	18	4,5	–
ОПП	1	1÷16	0,2	$10^4\div10^8$	10	2,5	[8]
ПВДФ	20	1÷4	0,6	–	20	1,7	[7]
ZnO	5	–	–	–	11	1	[3, 12]

ческих импульсов. Чувствительность ПП определялась сравнением измеренного и рассчитанного по общепринятым выражениям p [5, 8, 13]. Погрешности измерений определялись конкретными условиями эксперимента и в среднем составляли 20%.

Во втором методе для калибровки использовался эффект нелинейной трансформации акустического импульса конечной амплитуды по мере его распространения в эталонной жидкости. Ранее [5, 8] предлагалось несколько принципов его использования – по изменению ширины импульса, появлению на фронте импульсов разрывов и т.п. Весьма целесообразно, на взгляд авторов, в данном случае фиксировать изменение наклона фронта прямолинейного участка профиля импульса. Известно, что

$$\frac{d\tau}{dp}=\frac{d\tau}{dp}\bigg|_{z=0}-\frac{\epsilon_{ак}z}{\rho_ж v_ж^3}, \tag{2}$$

$\epsilon_{ак}$ – нелинейный акустический параметр, z – текущая координата в глубь жидкости, $\rho_ж$ – ее плотность, $v_ж$ – скорость звука в ней. Хорошо известно также, что при изменении энергии лазерного импульса ($E_л$) крутизна профиля фронта при $z = 0$ меняется как

$$\frac{d\tau}{dp}\bigg|_{z=0}\approx E_л^{-1}. \tag{3}$$

Исследуя зависимость производной $d\tau/dV$ при фиксированном z от величины $E_л$, достаточно легко, используя соотношения (2) и (3), вычислить величину $\epsilon_{ак}z/\rho_ж v_ж^3 S$. Отсюда, зная материальные константы среды и z, легко определить S. В эксперименте использовался генератор на стекле СЗС-22, эталонными жидкостями являлись дистиллированная вода и этанол. Ошибка измерения по описанному методу также составляет около 20%.

Всего в экспериментах было изучено 20–30 экземпляров ПП. Все измерения проводились в лабораторных условиях.

Результаты измерений представлены в таблице, где приведены также имеющиеся в литературе [3, 7, 8, 12] характеристики ПП с пьезоактивными элементами из родственных материалов. Диапазоны чувствительности в графе S соответствуют приведенным толщинам пленок. Величины d_{33} материала КА вычислялись по выражению (1). При этом использовались данные для ПП с пьезопленками толщиной от 2,5 до 5 мкм. Для более толстых пленок отмечалось уменьшение d_{33}, связанное, очевидно, с явлением разориентации текстуры по мере роста $h_{пл}$. Погрешность определения величин S и d_{33} составляет 15–18%. Данных по d_{33} пьезопленки ZnO в литературе нами не обнаружено и в таблице приведена величина d_{33} соответствующего монокристалла [12]. Высокая степень ориентации текстурированных пленок ZnO, достигнутая к настоящему времени, делает такую замену вполне правомерной [9]. Отметим, что чувствительность пьезоприемников на основе материала ОПП, данная в работе [8], относится к условной нагрузочной емкости 200 пФ; в таблице же для удобства сравнения величина S приведена к собственной емкости.

Анализируя данные таблицы с точки зрения сравнения качества использованных пьезоматериалов, следует иметь в виду, что все они получены для ПП, имеющих пьезопленки разной толщины. Совершенно очевидно, что приемники с более толстыми пленками обладают большей чувствительностью, но одновременно и меньшей полосой

пропускания. Поэтому для корректного материаловедческого прогноза следует привлечь к рассмотрению уравнение (1), связывающее толщины пленок и их материальные константы. Как следует из (1), критерием качества пьезопленок в данном случае является отношение d_{33}/ϵ_{33}, которое обусловливает чувствительность приемников при заданной $h_{пл}$. Содержащиеся в таблице данные свидетельствуют о том, что представляемый здесь пьезоматериал существенно превосходит по этому параметру свои аналоги.

Исследования ПП проводились в бездисперсионной области чувствительности, и экспериментальной информации об их полосе пропускания получить в этой работе было невозможно. Однако в отдельной серии экспериментов авторы провели сравнение формы возбуждаемых в стеклах акустических импульсов и отвечающих им электрических импульсов, генерированных ПП. Форма импульсов рассчитывалась по общепринятым выражениям [5, 13]. Условия регистрации были такими же, как при измерении S. Из сравнения полученных результатов видно, что приемники способны воспроизводить форму фронтов длительностью по крайней мере 20 нс. Разумеется, этот вывод имеет оценочный характер и не отражает всех возможностей созданных приемников.

Таким образом, авторами данной работы получен новый пленочный пьезоэлектрический текстурированный материал. На его основе созданы широкополосные приемники акустических импульсов. Исследования их характеристик показали, что новый пьезоматериал в настоящее время является лучшим материалом для устройств такого типа. Авторы полагают, что созданные ими приемники благодаря своей высокой чувствительности, малой инерционности, дешевизне и доступности найдут широкое практическое применение.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Patel C.K.N., Tam A.C.* Pulsed optoacoustic specscopy solids // Rev. Mod. Phys. 1981. V. 53. № 3. P. 517–551.
2. *Tam A.C.* Applications of photoacoustic sensing techniques // Rev. Mod. Phys. 1986. V. 58. № 2. P. 381–481.
3. *Tam A.C.* Pulsed laser generation of ultrashort acoustic pulses Application for thin film ultrasonic measurements // Appl. Phys. Lett. 1984. V. 45. № 1. P. 510–512.
4. *Tam A.C., Leung W.P.* Measurements of small elastic anisotropy in solids using laser-indueced ultrasonic pulses // Appl. Phys. Lett. 1984. V. 45. № 15. P. 1040–1042.
5. *Божков А.И., Бункин Ф.В.* и др. Исследования по гидрофизике // Т. ФИАН. Т. 15. М.: Наука, 1984. С. 123.
6. *Веселовский И.А., Жиряков Б.М., Коротченко А.И., Самохин А.А.* Влияние фазовых переходов на фотоакустический эффект при воздействии лазерного излучения на конденсированные среды // Квантовая электрон., 1985. Т. 12. № 2. С. 381–383.
7. *Овчинников О.Б., Пашин А.Е., Пученков О.В., Расторгуев Д.Л.* К вопросу о регистрации пространственно-временных характеристик коротких акустических импульсов, возбужденных оптическим излучением // Акуст. журн. 1987. Т. 33. № 2. С. 312–314.
8. *Веселовский И.А., Дорожкин Л.М. и др.* Приемник акустических импульсов на основе органической поликристаллической пленки в импульсных измерениях // Акуст. журн. 1987. Т. 33. № 5. С. 834–839.
9. *Шермергор Т.Д., Стрельцова Н.Н.* Пленочные пьезоэлектрики. М.: Радио и связь, 1986.
10. *Шубников А.В.* Пьезоэлектрические текстуры. М.–Л.: Изд. АН СССР, 1946.
11. Приборы для неразрушающегося контроля материалов и изделий: Справочник / Под ред. Клюева В.В. М.: Изд-во 1976. Т. 2.
12. Акустические кристаллы: Справочник / Под ред. Шаскольской М.П. М.: Наука, 1982.
13. *Gournay L.S.* Conversion of electromagnetic to acoustic energy by surface heating // J. Acoust. Soc. Amer. 1966. V. 40. № 6. P. 13–20.

Научно-исследовательский институт
органических полупроводников и красителей

Поступила в редакцию
20.06.91

L.M. Dorozhkin, V.S. Doroshenko, A.A. Karabutov, V.V. Lazarev,
M.P. Matrosov, E.D. Pol'skikh, B.A. Chaianov

WIDE-BAND PIEZOELECTRIC TRANSDUCER BASED ON NEW TYPE OF TEXTURAL MATERIAL

A new wide-band transducer for detection of acoustic pulses in solids is presented. The transducer consists of a thin partially metallized piezoelectric film deposited on a quartz substrate. The quartz buffer is connected to the opposite side of the piezofilm by an epoxy resin. The transducer is coupled to a sample by a thin film of an acoustic coupling material such as water, glycerol, etc.

The piezofilm is a new organic-based textural piezoelectric material which is similar to ZnO, CdS and AlN piezofilms. The texture axis is normal to the substrate, hence the developed piezofilm gives rise to a longitudinal mode.

The transducer properties were investigated by studying its reaction to laser-induced acoustic pulses. In the experiments such amplitude-calibrated pulses were generated in colored glasses or mercury by YAG: Nd laser. Sensitivity of the wide-band transducers difined as a ratio of a response voltage (V) to the applied acoustic amplitude (p): $S = V/p$. Amplitude values were calculated theoretically using well known expressions. Several series of measurements resulted in the sensitivity $S = 1$ mkV/Pa. By the use of a simple formula one can easily obtain the value of the piezomodulus $d_{33} = 18 \pm 3$ C/N. This value exceeds to some extent a similar modulus of $LiNbO_3$.