

单片扫描 QCM 阵列的封装 及浸液中频率稳定性

石志松^{1,2}, 朱惠忠³, 梁吴迪^{1,2}

(1. 清华大学 精密仪器系, 北京 100084; 2. 清华大学 深圳研究生院, 广东 深圳 518055;

3. 深圳清华大学研究院, 广东 深圳 518057)

摘要: 研究了一种适用于液相化学和生物量检测的单片扫描式 QCM 阵列传感器, 研究了器件的封装及其在液相条件下的工作稳定性。采用单边封闭的封装方式, 研究了器件在单边触液条件下的工作特性。阵列器件采用扫描工作方式, 分时激励阵列中的各单元器件依次进入谐振工作状态, 使某一时刻仅有一个单元器件处在工作状态, 避免了单元器件间的振动耦合。实验制作的单片扫描式 QCM 阵列传感器试验结果显示, 阵列器件中各单元器件的气相平均频率稳定度达到 $\pm 0.2 \times 10^{-6}/\text{h}$, 液相平均频率稳定度达到 $\pm 0.4 \times 10^{-6}/\text{h}$ 。

关键词: 石英微天平分析仪; 阵列传感器; 液相; 扫描; 生物传感器

中图分类号: TP212.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1671-4776(2007) 07/08-0400-04

Packaging and Frequency Stability of Monolithic Scanning QCM Sensor Array in Liquid

SHI Zhi-song^{1,2}, ZHU Hui-zhong³, LIANG Wu-di^{1,2}

(1. Department of Precision Instruments and Mechanology, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 2. Graduate School at Shenzhen, Tsinghua University, Shenzhen 518055, China; 3. Research Institute of Tsinghua University at Shenzhen, Shenzhen 518057, China)

Abstract: A novel monolithic scanning QCM (quartz crystal microbalance) sensor array for detecting in liquid was investigated. The design aspects of the sensor array, the scanning measuring circuit, the resonant circuit, the packaging of the sensor array as well as the performance of the sample device immersed in liquid were investigated. The results show that the distance between electrodes has no remarkable influence to the resonators with the operation mode of scanning in turn. According to this conclusion, the configuration of the electrodes can be further optimized, thus more resonators could be integrated on the same plate. It is also shown that the frequency stability of the QCM sensor arrays could be up to about $\pm 0.2 \times 10^{-6}/\text{h}$ in gas, and $\pm 0.4 \times 10^{-6}/\text{h}$ in liquid.

Key words: QCM; sensor array; liquid phase; scanning; biosensors

1 引言

QCM 传感器具有极高的质量敏感性, 在生物和化学领域微量物质检测方面有着广泛的应用前

景。随着检测要求的不断提高, 如何进一步降低干扰因素的影响, 提高 QCM 生物和化学传感器的分辨率和特异性, 成为 QCM 传感技术研究的重要课题。阵列化、集成化、智能化也成为 QCM 生物和化

收稿日期: 2007-05-10

学传感器近年来重要的发展方向^[1]。本文基于分时扫描激励的阵列工作模式,研究了一种用于液相生物量检测的新型单片扫描式 QCM 阵列传感器,通过在同一基片上制作多个 QCM 单元器件,使阵列中的单元器件处于完全相同的时间和环境下,以期提高多参数参比测量时的可靠性,进而提高传感器的检测精度。本文研究了单片扫描式 QCM 阵列器件的设计与制作、液相振荡电路及阵列扫描电路的设计、传感器的封装以及液相条件下器件的特性等问题。

2 单片扫描式 QCM 阵列敏感器件设计与制作

在前期的实验研究中^[3],基于能陷理论设计了图 1(a)所示的 5 电极 QCM 阵列,利用大小为 22 mm×10 mm×0.21 mm 的 AT-切石英晶片,试制了基频为 8.3 MHz 的阵列器件(如图 2)。实验证明,在一片等厚石英晶片上制作多个电极对形成 QCM 阵列的方案是可行的。

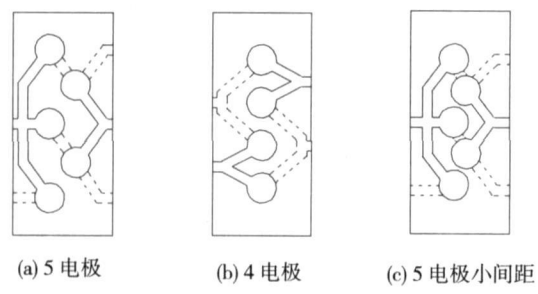


图 1 QCM 阵列电极分布设计

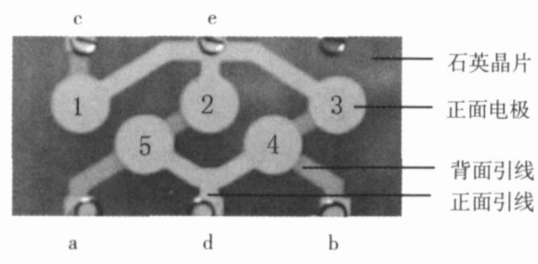


图 2 5 电极 QCM 阵列

为了进一步研究电极间距对阵列中各个谐振器单元的影响,又设计了图 1 中(b),(c)两种阵列。其中(b)比(a)更能满足能陷判据,通过对比实验来观察器件性能是否有所提高;(c)是小间距阵列,用以验证在电极间距很小的情况下,扫描式阵列工作方式是否仍然能够避免不同器件间的振动耦合。

由于晶片加工质量对器件性能有重要影响^[3],按照新的设计方案制作第二批器件时,进一步提高

了的石英晶片的精加工水平,基频选择约为 10 MHz。

3 传感器的封装

为了能用于液相试验,对制作好的阵列器件进行了带有液池的封装设计,如图 3 所示,封装壳体采用尼龙 66,壳体与晶片之间的粘接与密封用 706 粘合剂(单组分室温硫化硅橡胶)。

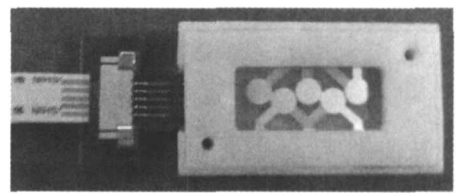


图 3 QCM 阵列封装结构

QCM 阵列封装成单面触液形式,以尽量避免液体电化学性质的影响,阵列的一面作为液池的底部,浸没于试验液体环境,阵列另一面密封于一个腔体,处于稳定的空气环境中;液池加液后效果如图 4 所示。封装结构设计了插拔式“金手指”连接方式,使阵列器件与检测系统的连接方便简单,连接的 QCM 阵列具有易换性。

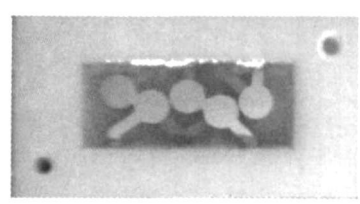


图 4 QCM 阵列单面触液

4 实验系统

QCM 阵列的实验测试系统原理如图 5 所示,其中选通电路包括可调时钟脉冲发生电路、计数器电路、数码显示电路、信号继电器逻辑控制电路等几个部分,通过逻辑电路控制信号继电器的开合状态实现对阵列单元的选择扫描。

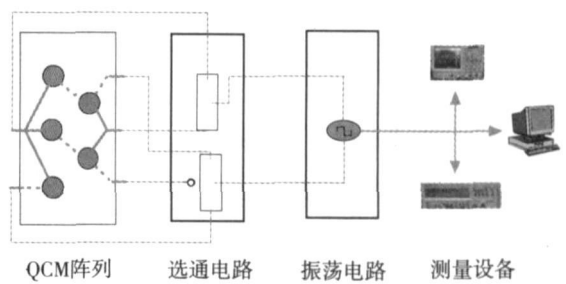


图 5 QCM 阵列测试系统原理框图

传感器驱动电路采用双高速比较器芯片 Max902 搭建的两级振荡电路(如图 6),该电路除了

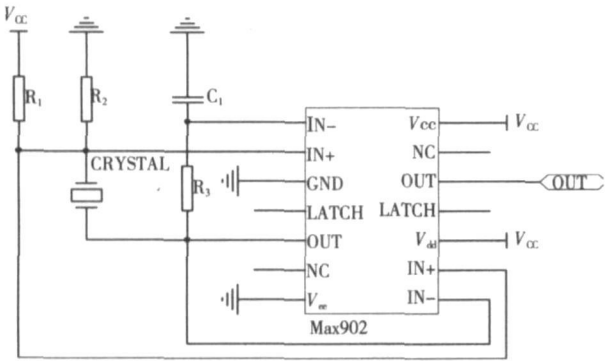


图6 Max902 两级振荡电路

有很好的液相起振性能和频率稳定性外,实验表明在电路接入测量仪器时,还具有很好的抗干扰性能。

5 实验结果及分析

5.1 气相条件下不同电极间距 QCM 阵列的频率稳定度及其离散性

基于图 5 所示的测试系统,对 (a) 10 MHz-5 电极阵列、(b) 10 MHz-5 电极小间距阵列、(c) 10 MHz-4 电极阵列和 (d) 8.3 MHz-5 电极阵列 4 种阵列器件进行了气相条件振荡频率测试,数据如表 1 所示(各取一个典型阵列为例)。

表 1 频率稳定度及其离散性测试

	1 号谐振器/ MHz	2 号谐振器/ MHz	3 号谐振器/ MHz	4 号谐振器/ MHz	5 号谐振器/ MHz	稳定度/ (Hz · h ⁻¹)	各单元间最大频差 Δ/ Hz
(a)	10.032533	10.036667	10.039379	10.036597	10.033414	±1 ~ ±2	6846
(b)	10.035664	10.034275	10.036445	10.039506	10.038794	±1 ~ ±3	5231
(c)	10.030285	10.026194	10.030651	10.023838	—	±1 ~ ±2	7668
(d)	8.319718	8.310616	8.310472	8.293110	8.322228	±2 ~ ±3	29000

分析表 1 数据以及未列出的其他多个阵列数据,得出如下结论:

①10 MHz 阵列频率稳定度范围为 ±1 ~ ±3 Hz/h,典型频率稳定度为 ±2 Hz/h,各单元间典型频率差为 5 kHz 左右;8.3 MHz 阵列频率稳定度范围为 ±2 ~ ±3 Hz/h,典型频率稳定度为 ±3 Hz/h,各单元间典型频率差为 25 kHz 左右。可见,提高加工精度后制作的 10 MHz 阵列 QCM 器件的频率离散性大大降低。

②在分时扫描激励的工作模式下,阵列中各谐振器件单元的间距对各单元的性能无明显影响。利用这一结论,可以重新设计电极阵列布局,增大阵列密度,在一块石英晶片上集成尽可能多的谐振器单元,这对 QCM 阵列的集成化、小型化有重要意义。

5.2 浸液稳定过程

液池加入去离子水后, QCM 阵列振荡频率会立即降低,以其中一个单元为例,其频率从 10.026442 MHz 降为 10.017576 MHz,降低约 9 kHz,如图 7 所示。而后会有一个稳定过程,由于该稳定过程的频率变化远小于加液前后的频率变化,所以从图 7 不易观察到该稳定过程。

图 8 反映了加液后的频率稳定过程,10 min 内 QCM 振荡频率从 10.017576 MHz 逐渐降到 10.017474MHz,变化约 0.1 kHz,而后基本稳定,这

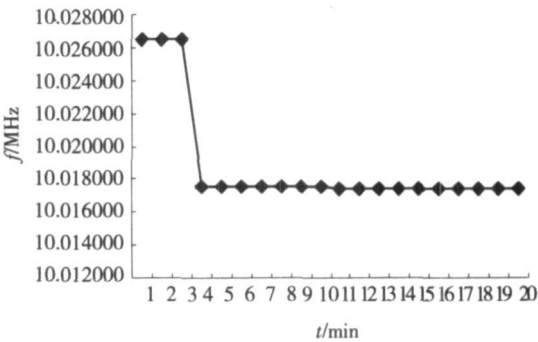


图 7 液池加液前后 QCM 振荡频率变化

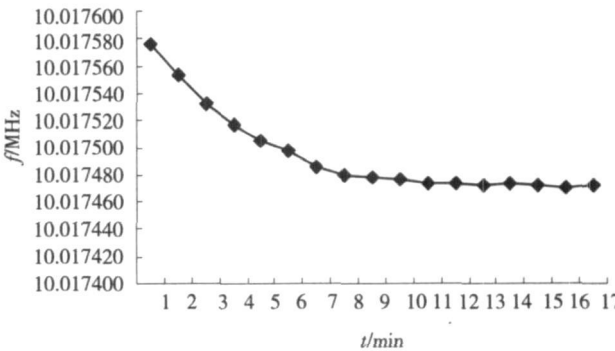


图 8 加液后 QCM 振荡频率稳定过程

一段时间反映了液体在晶体和电极表面形成稳定膜层的时间。

5.3 液相频率稳定性

QCM 阵列在液相稳定振荡后,对其频率稳定

度进行了测试,图9是在一个多小时的时间里的频率测量曲线,相邻测试点间隔3 min。

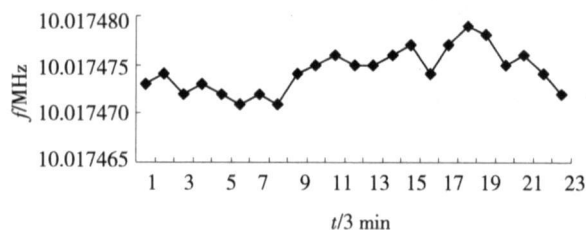


图9 液相频率稳定性测试曲线

从图中可以看出,相邻测试点间的频率变为 $1 \sim 3\text{ Hz}$,即3 min内的频率稳定度为 $\pm 0.5 \sim \pm 1.5\text{ Hz}/3\text{ min}$ 。1 h的时间里,频率变化在 $10.017474\text{ MHz} \pm 4\text{ Hz}$ 范围内,所以长时间的频率稳定度达到 $\pm 4\text{ Hz}/\text{h}$ 。

6 结 论

实验结果表明,在等厚石英晶片上制作多对电极,形成QCM阵列的设计方案可以实现阵列中各单元的稳定振荡;利用选通电路使阵列各个单元分时工作以避免振动耦合,不同于现有单片集成QCM阵列利用隔离槽和隔离沟消除振动耦合的方

(上接第392页)

4 结 论

综合分析,对于STW传感器,栅阵厚度的增加有利于灵敏度的提高,栅阵厚度越大,灵敏度越高。但是在同一工作频率下栅阵厚度的增加同时引起损耗的变化^[8],在实际器件设计时,应当同时考虑这两个因素,选择一个最佳厚度。在栅阵厚度值确定时,IDT的激发频率接近阻带边缘频率时能获得较大的灵敏度。对于栅阵材料的选择,由以上的分析可知,金获得灵敏度最大,大于银的2倍,远远高于铝。

参考文献:

- [1] DAVIS K A, LEARY T R. Continuous liquid-phase piezoelectric biosensor for kinetic immunoassays[J]. Analytical Chemistry, 1989, 61(11): 1227-1230.
- [2] WOHLTJEN H, DESSY R. Surface acoustic wave probe for chemical analysis I: introduction and instrument design[J]. Analytical Chemistry, 1979, 51: 1458-1475.
- [3] ANDLE J C, VETELINO J F, LADE M W, et al. An acoustic plate mode biosensor[J]. Sensors and actuators B, 1992, 8: 191-198.

法,为QCM阵列单片集成化提供了一条新思路。

在分时扫描激励的工作模式下,阵列的电极间距对阵列中各谐振器单元的性能无明显影响,这对阵列的集成化、小型化有重要意义。

本文所讨论的单片扫描式QCM阵列传感器可以作为多种生物量、化学量传感器研究的基础性平台,通过制备不同的生物和化学敏感膜形成不同种类的传感器,可实现同时检测多个目标量。

参考文献:

- [1] RABE J, BÜTTGENBACH S, SCHRÖDER J, et al. Monolithic miniaturized quartz microbalance array and its application to chemical sensor systems for liquids[J]. IEEE Sensors Journal, 2003, 3(4): 361-368.
- [2] 石志松,朱惠忠,王文炎.用于液相生物量检测的单片阵列QCM传感器[J].仪器仪表学报,2006,27(6)(增刊II): 1630-1632.
- [3] 王矜奉,姜瑞桐,石瑞大.压电振动[M].北京:科学出版社,1989.

作者简介:

石志松 (1980—),男,清华大学精密仪器与机械学系测控技术与仪器专业硕士研究生,主要从事压电石英晶体传感器及仪器的研究;

朱惠忠 (1958—),男,副教授,1995年获得清华大学工学博士学位,目前主要研究方向为石英谐振式力敏传感器、化学传感器及免疫传感器,发表学术论文30余篇。

- [4] RADEVA E I, AVRAMOV I D. High-resolution humidity measurement with surface transverse wave based resonant devices. Applications to wireless remote sensing[J]. Materials Science and Engineering C, 2000, 12 (1-2): 71-76.
- [5] KOVAS G, VELLEKOOP M J, HAUEIS R, et al. A love wave sensor for (bio)chemical sensing in liquids[J]. Sensors and Actuators A, 1994, 43: 38-43.
- [6] KOSINSKI J A, PASTORE R, AVRAMOV I D. Theoretical and experimental evidence for superior intrinsic Q of STW devices on rotated Y-cut quartz[C]//The IEEE International Frequency Control Symposium. Besancon, France, 1999: 867-870.
- [7] AULD B A. Acoustic waves and fields in solids, volume II [M]. New York, Wiley, 1973: 272-278.
- [8] YANTCHEV V M, STRASHILOV V L, RAPP M, et al. Theoretical and experimental mass-sensitivity analysis of polymer-coated SAW and STW resonators for gas sensing applications[J]. IEEE Sensors Journal, 2002, 2(4): 307-313.

作者简介:

陈 烨 (1986—),女,2005年本科毕业于同济大学电气系,获学士学位,现就读于中国科学院声学研究所,攻读硕士学位,研究方向为超声电子学。