

УДК 534.231.3

## ПРИМЕНЕНИЕ ПЬЕЗОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО РЕЗОНАТОРА ДЛЯ ВОССТАНОВЛЕНИЯ ПАРАМЕТРОВ КОНТАКТИРУЮЩЕЙ ЖИДКОСТИ

© 2024 г. А. П. Семёнов<sup>а</sup>, Б. Д. Зайцев<sup>а,\*</sup>, А. А. Теплы<sup>а</sup>, И. А. Бородина<sup>а</sup>

<sup>а</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова Российской академии наук, Саратовский филиал, ул. Зеленая 38, Саратов, Россия

\*e-mail: zai-boris@yandex.ru

Поступила в редакцию 13.05.2024 г.

После доработки 18.10.2024 г.

Принята к публикации 29.10.2024 г.

Исследовано влияние проводящих и непроводящих жидкостей на характеристики пьезоэлектрического резонатора с продольным электрическим полем, погруженного в жидкость. Резонатор, работающий на продольной акустической mode с резонансной частотой около 4 МГц, представлял собой диск из лангасита  $X$ -среза с круглыми электродами на обеих сторонах. Резонатор закрепляли в основании контейнера, который заполняли исследуемой жидкостью. Затем реальная и мнимая части его электрического импеданса в зависимости от частоты измерялись векторным анализатором цепей. Была построена модернизированная электромеханическая схема такого резонатора, учитывающая влияние проводимости и диэлектрической проницаемости жидкости на изменение эффективной площади электродов. Продемонстрирована возможность определения модуля упругости, коэффициента вязкости исследуемой жидкости и величин дополнительных элементов эквивалентной схемы путем фиттинга рассчитанных частотных зависимостей комплексного электрического импеданса резонатора, погруженного в жидкость, к измеренным зависимостям.

**Ключевые слова:** пьезоэлектрический резонатор, возбуждаемый продольным электрическим полем, эквивалентная схема Мэзона, электрический импеданс и адmittанс, проводимость, диэлектрическая проницаемость, коэффициент вязкости и модуль упругости жидкости

**DOI:** 10.31857/S0320791924060027, **EDN:** JUCNJO

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Разработка и совершенствование акустических датчиков и методов определения механических и электрических характеристик различных жидкостей остаются актуальными в течение последних десятилетий [1–38] для многих областей науки и техники. Особое внимание уделялось датчикам, которые используют поверхностные и пластинчатые акустические волны, распространяющиеся в пьезоэлектрических структурах. Здесь можно выделить двухканальные датчики, основанные на возбуждении и регистрации поперечно горизонтальных поверхностных акустических волн, распространяющихся в танталате лития 36-УХ среза [4–8]. Один канал у таких датчиков является электрически свободным, и он реагирует на изменение электрических и механических свойств контактирующей жидкости. Другой канал электрически закорочен проводящей пленкой, и он реагирует

только на изменение механических свойств. Особой популярностью пользуются датчики и методы, основанные на использовании акустических волн нулевого и высших порядков в пьезоэлектрических пластинах [9–15, 33]. Эти методы основаны на том, что одни типы волн чувствительны к изменению механических свойств исследуемой жидкости, а другие типы волн чувствительны только к изменениям электрических свойств. Это открывает возможность раздельного определения механических и электрических свойств жидкости при анализе различных типов волн в одном датчике.

Весьма популярными оказались датчики, основанные на резонаторах с поперечным электрическим полем. Электроды таких резонаторов расположены с одной стороны пьезоэлектрической пластины, а акустическая волна возбуждается между электродами [16–24]. Было показано, что резонансная частота и максимум реальной части

электрического импеданса зависят от вязкости, проводимости и диэлектрической проницаемости жидкости, контактирующей со свободной стороной резонатора. Показано также, что с помощью метода эквивалентных схем можно определять вязкость, модуль упругости и диэлектрическую проницаемость жидкости [25].

Весьма эффективными оказались методы анализа жидкостей с помощью резонаторов с продольным электрическим полем [26–32]. Показаны возможности таких резонаторов по одновременному определению коэффициентов вязкости и модулей упругости как простых супензий, так и вязких и проводящих жидкостей.

Данная работа посвящена изучению влияния проводящих и непроводящих жидкостей на характеристики пьезоэлектрического резонатора с продольным электрическим полем с использованием модернизированной электромеханической схемы резонатора, полностью погруженного в исследуемую жидкость, учитывающей влияние проводимости и диэлектрической проницаемости жидкости на изменение эффективной площади электродов.

## 2. ОПИСАНИЕ РЕЗОНАТОРА И ОПРЕДЕЛЕНИЕ МАТЕРИАЛЬНЫХ КОНСТАНТ ЛАНГАСИТА

В работе исследовался резонатор из лангасита  $X$ –среза, возбуждаемый продольным электрическим полем. Выбор ориентации кристалла был

обусловлен низким температурным коэффициентом задержки для объемной продольной акустической моды. Резонатор с толщиной пластины 706 мкм и диаметром электродов 7.5 мм был закреплен в основании пластмассового контейнера объемом 30 мл (рис. 1) [30–32].

Вначале были измерены действительная и мнимая части электрического импеданса свободного резонатора в зависимости от частоты с помощью анализатора импеданса E4990A (Keysight Technologies, Санта-Роза, Калифорния, США). Расчет частотных зависимостей реальной и мнимой частей электрического импеданса свободного резонатора проводился с помощью эквивалентной схемы Мэзона [39–41]. С помощью данной схемы и методики, подробно изложенной ранее [30, 31, 40–42], были получены значения материальных констант лангасита, такие как плотность  $\rho$ , модуль упругости  $C_{11}$ , коэффициент вязкости  $\eta_{11}$ , пьезоэлектрическая константа  $e_{11}$  и диэлектрическая проницаемость  $\epsilon_{11}$ . Эти данные соответствовали системе координат, в которой ось  $X_1$  ориентирована нормально плоскости пластины. В табл. 1 представлены справочные [43] и полученные в рамках данной работы материальные константы лангасита.

Результат подгонки рассчитанных и измеренных частотных зависимостей реальной и мнимой частей электрического импеданса свободного резонатора представлен на рис. 2. Видно хорошее их соответствие.

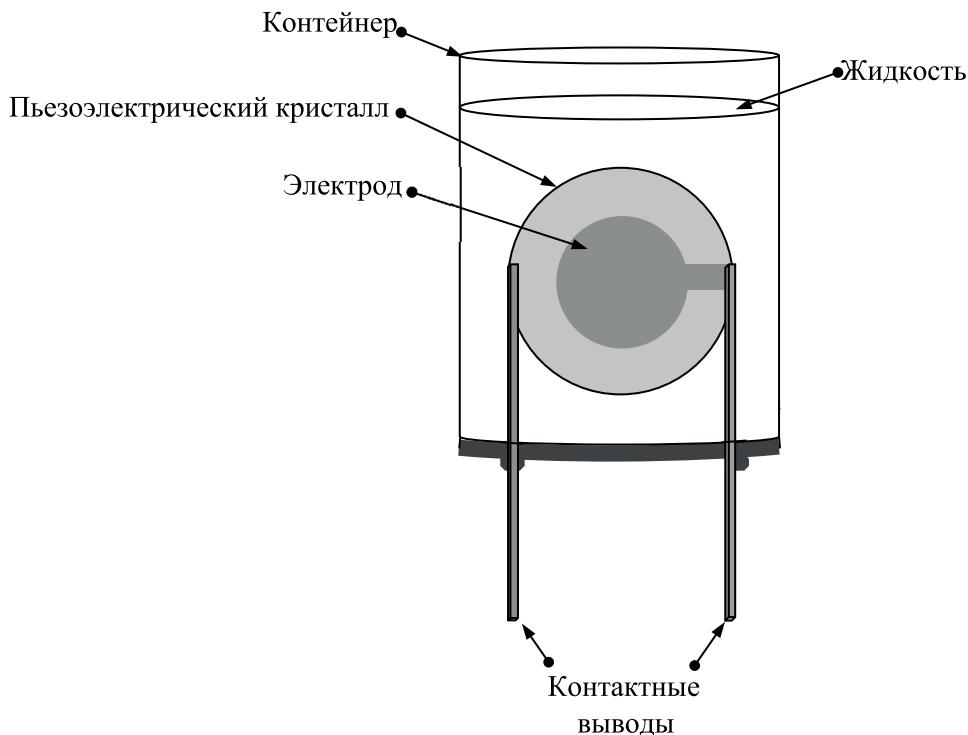
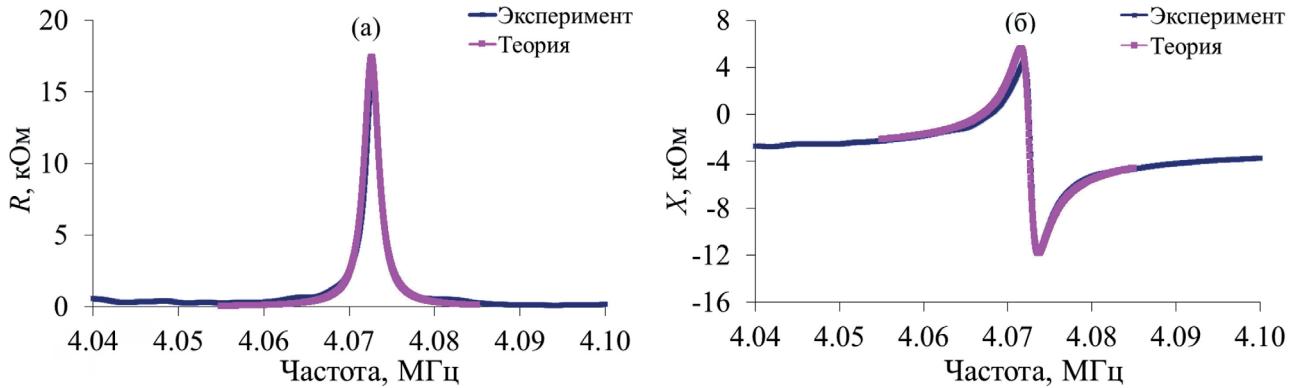


Рис. 1. Жидкостный контейнер с закрепленным в основание резонатором.

Таблица 1. Значения материальных констант лангасита  $X$ -среза.

|                        | $\rho$ , кг/м <sup>3</sup> | $C_{11}$ , 10 <sup>10</sup> Па | $\eta_{11}$ , Па·с | $e_{11}$ , С/м <sup>2</sup> | $\epsilon_{11}$ , 10 <sup>-11</sup> Ф/м |
|------------------------|----------------------------|--------------------------------|--------------------|-----------------------------|---|
| Справочные данные [43] | 5743                       | 18.93                          | 0                  | -0.431                      | 16.79                                   |
| Результаты фиттинга    | 5743                       | 18.88                          | 3.8                | -0.35                       | 17.56                                   |

Рис. 2. Частотные зависимости (а) – реальной и (б) – мнимой частей электрического импеданса резонатора из лангасита  $X$ -среза без нагрузки (синий – эксперимент, розовый – теория).

Затем контейнер заполняли образцом исследуемой жидкости так, чтобы резонатор был полностью погружен в жидкость, и повторяли измерение указанных частотных зависимостей. Ниже представлена схема Мэзона для описанного резонатора из лангасита, контактирующего с исследуемой жидкостью, и описана методика определения материальных постоянных этой жидкости.

### 3. ЭКВИВАЛЕНТНАЯ СХЕМА МЕЗОНА РЕЗОНАТОРА, ПОГРУЖЕННОГО В ИССЛЕДУЕМУЮ ЖИДКОСТЬ

Исследование акустических и диэлектрических свойств контактирующих жидкостей методом, изложенным ранее [30–32], показало, что путем учета в эквивалентной схеме резонатора, полностью погруженного в жидкость с конечной проводимостью, добавочной емкости  $C_a$  и добавочного сопротивления  $R_a$  можно определить модуль упругости и коэффициент вязкости жидкости [32]. Эта схема представлена на рис. 3. Здесь добавочная емкость  $C_a$  и добавочное сопротивление  $R_a$  связаны с шунтирующим влиянием контактирующей жидкости.

При этом механический контакт резонатора с жидкостью описывается импедансом  $Z'$ , который определяется следующей формулой [40]

$$Z' = z_{11}' S, \quad (1)$$

где  $S$  – площадь электродов резонатора. Удельный механический импеданс  $z_{11}'$  равен

$$z_{11}' = \{(C_{11}' + i\omega\eta_{11}')\rho'\}^{1/2}, \quad (2)$$

где  $C_{11}'$  – продольный модуль упругости,  $\omega$  – кривая частота,  $\eta_{11}'$  – продольный коэффициент вязкости,  $\rho'$  – плотность. Индексом “ $'$ ” обозначена принадлежность величины к жидкости.

Согласно методике, описанной в [30–32], определяется такой набор искомых величин  $C_{11}'$ ,  $\eta_{11}'$ ,  $C_a$  и  $R_a$ , при котором экспериментальные и расчетные частотные зависимости реальной и мнимой частей электрического импеданса резонатора, полностью погруженного в жидкость, максимально совпадают друг с другом.

Однако эквивалентная схема на рис. 3 не учитывает тот факт, что проводимость и диэлектрическая проницаемость жидкости могут привести к увеличению эффективной площади электродов на поверхности кристалла резонатора. Это, в свою очередь, приведет к увеличению собственной емкости резонатора, которая окажется равной  $C_0 + C_0'$ , где  $C_0'$  – это связанная с возбуждением акустической волны добавочная емкость. Увеличение емкости приведет к изменению коэффициента трансформации электромеханического трансформатора  $N = h(C_0 + C_0')$ , где  $h = e_{11}/\epsilon_{11}$ . Здесь  $e_{11}$  и  $\epsilon_{11}$  – пьезоконстанта и диэлектрическая постоянная, относящиеся к лангаситу. С учетом этого фактора эквивалентную схему пьезоэлектрического резонатора можно представить в следующем виде (рис. 4). Именно эта схема будет использоваться в настоящей работе для расчета характеристик пьезоэлектрического резонатора, погруженного в жидкость и для определения механических и электрических свойств жидкости.

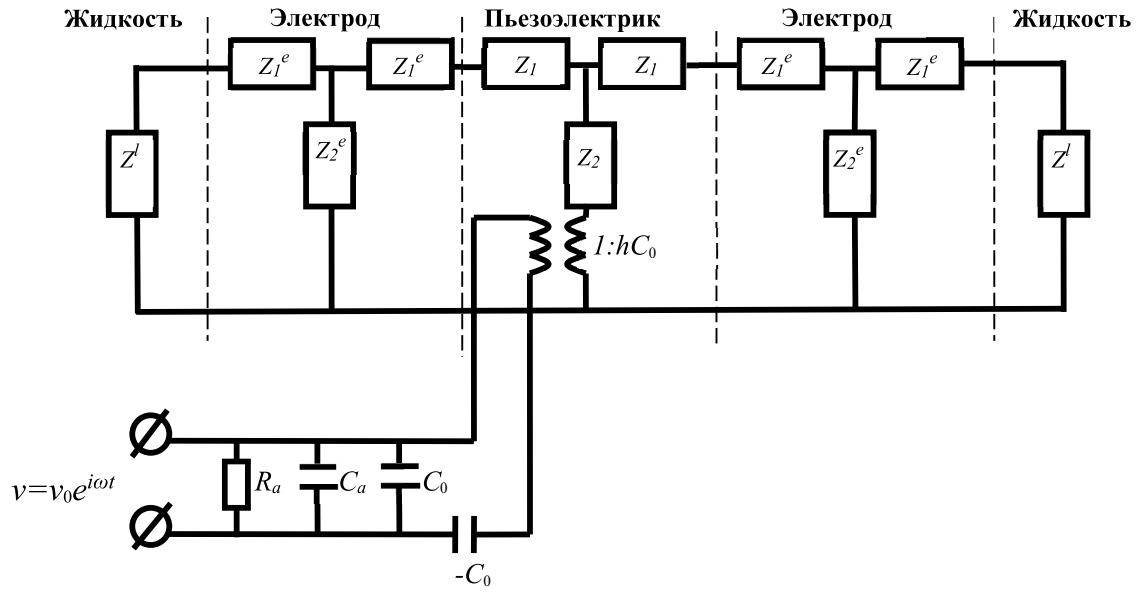


Рис. 3. Эквивалентная схема резонатора с продольным электрическим полем, погруженного в жидкость с учетом краевой добавочной емкости  $C_a$  и добавочного сопротивления  $R_a$ .

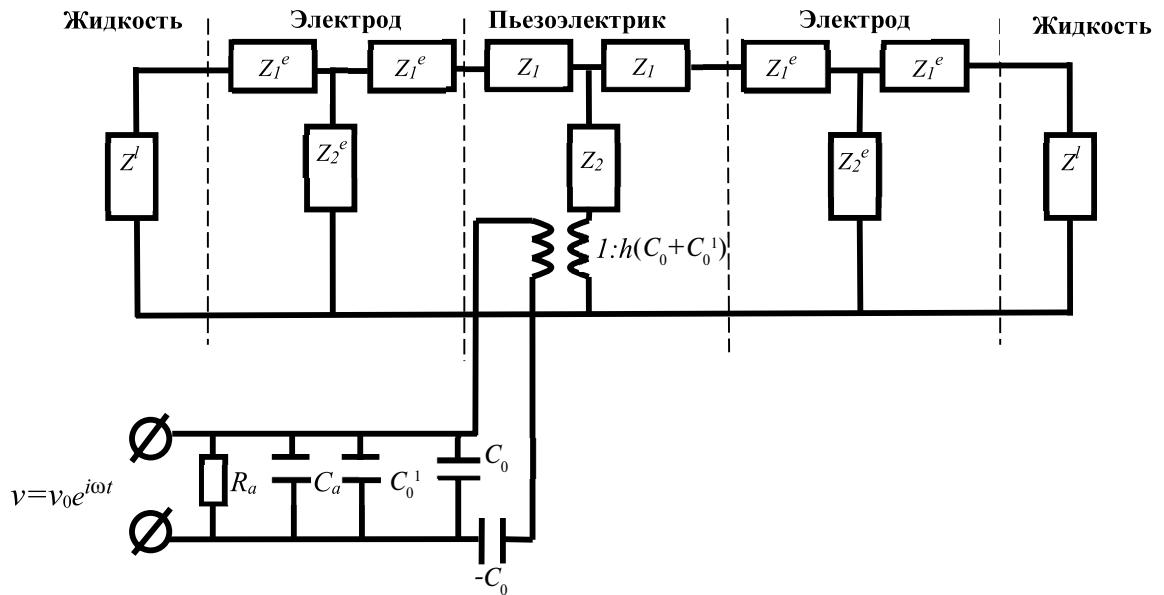


Рис. 4. Эквивалентная схема погруженного в жидкость резонатора с учетом дополнительной емкости  $C_a$  и дополнительного сопротивления  $R_a$ , которые связаны с присутствием жидкости, а также добавочной емкости  $C_0^1$ , связанной с увеличением эффективной площади электродов.

#### 4. ОПРЕДЕЛЕНИЕ МАТЕРИАЛЬНЫХ КОНСТАНТ НЕПРОВОДЯЩИХ ЖИДКОСТЕЙ

Таким образом, в данной работе на основе эквивалентной схемы (рис. 4) погруженного в жидкость резонатора с продольным электрическим полем определялись модуль упругости  $C_{11}^l$ , коэффициент вязкости  $\eta_{11}^l$  непроводящих жидкостей, а также добавочная емкость  $C_a$ , добавочное

сопротивление  $R_a$  и эффективная емкость резонатора  $C_0 + C_0^1$ . Определялся такой набор искомых величин  $C_{11}^l$ ,  $\eta_{11}^l$ ,  $C_a$ ,  $R_a$  и  $C_0^1$ , для которого экспериментальные частотные зависимости реальной и мнимой частей электрического импеданса погруженного в жидкость резонатора максимально соответствовали рассчитанным. В качестве непроводящих жидкостей исследовались дистиллированная вода, этиловый спирт, изопропиловый спирт,

ацетон, жидкий парафин, керосин и уайт-спирит. Рис. 5 показывает, что расчетные частотные зависимости, полученные методом подгонки параметров в рамках используемой теоретической модели для реальной ( $R$ ) и мнимой ( $X$ ) частей электрического импеданса резонатора, погруженного в дистиллированную воду (рис. 5а, 5б), в керосин марки ТС-1 (рис. 5в, 5г) и в ацетон (рис. 5д, 5е) находятся в хорошем соответствии с экспериментальными данными. Проводимость этих жидкостей не превышала 2 мкСм/см.

Найденные материальные постоянные исследуемых жидкостей представлены в табл. 2. Следует отметить, что диэлектрическая проницаемость  $\epsilon'$  и

плотность  $\rho'$  были предварительно измерены по методике, описанной ранее в [32, 33]. В результате фиттинга были найдены продольный модуль упругости  $C_{11}^{l'}$ , продольный коэффициент вязкости  $\eta_{11}^{l'}$ , скорость продольной волны  $v_{11}^{l'}$  и добавочное сопротивление  $R_a$ . Здесь же приведены справочные значения продольного модуля упругости  $C_{11}^{lR}$  и скорости продольной акустической волны  $v_{11}^{lR}$ , взятые из [45].

Из табл. 2 видно хорошее соответствие рассчитанных и справочных значений как для продольного модуля упругости, так и для скорости продольной акустической волны в жидкостях.

В табл. 3 приведено значение собственной емкости свободного резонатора  $C_0$ , полученное в

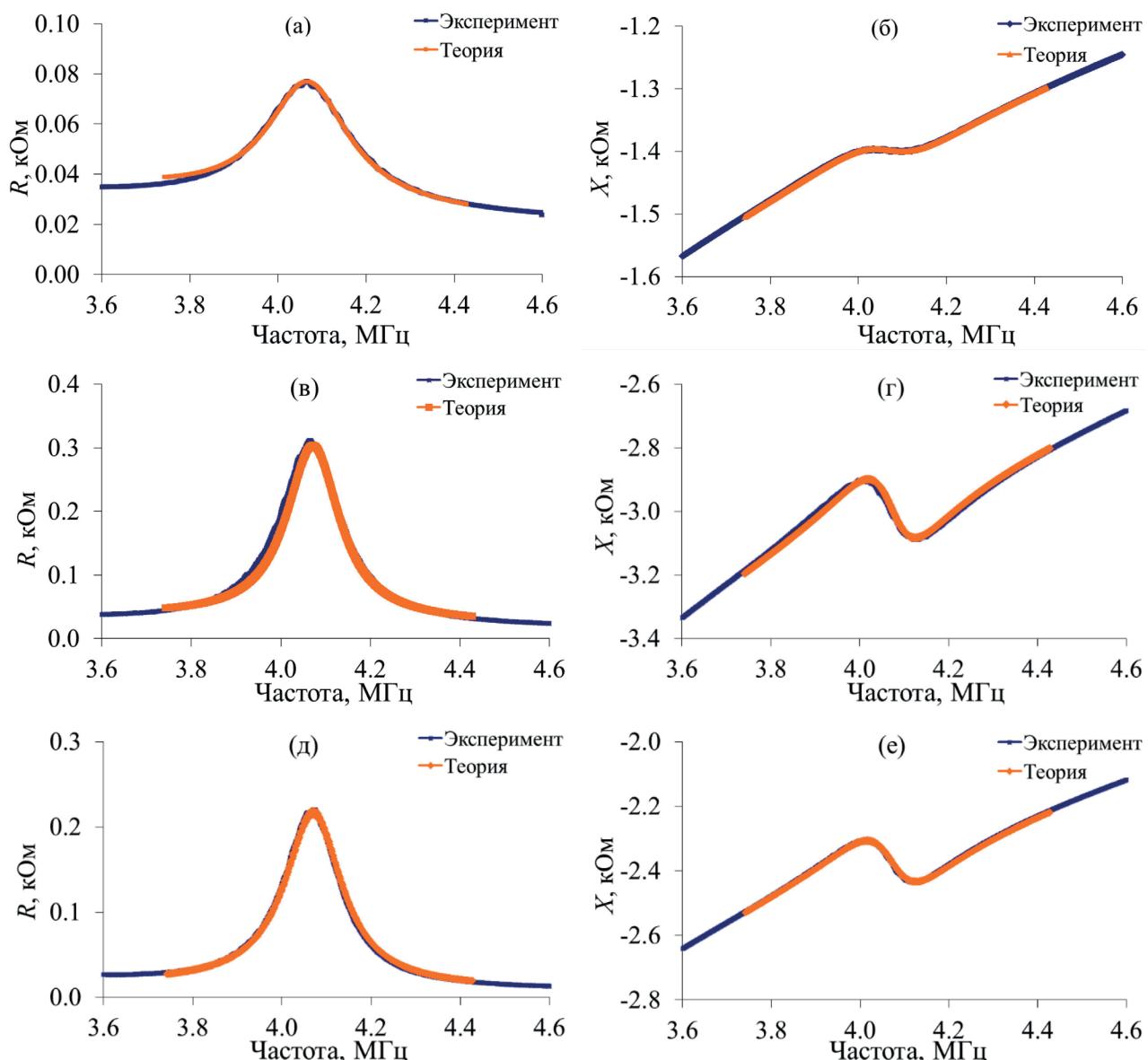


Рис. 5. Частотные зависимости (а, в, д) – реальной и (б, г, е) – мнимой частей электрического импеданса резонатора из лангасита, погруженного (а, б) – в воду, (в, г) – в керосин ТС-1 и (д, е) – в ацетон (синий цвет – эксперимент, оранжевый цвет – теория).

**Таблица 2.** Полученные и справочные [45] значения материальных констант исследуемых жидкостей.

| Жидкость            | $\epsilon'$ | $\rho'$ , кг/м <sup>3</sup> | $C_{11}^{IR}$ , 10 <sup>9</sup> Па | $C_{11}^I$ , 10 <sup>9</sup> Па | $\eta_{11}^I$ , мПа·с | $v_{11}^{IR}$ , м/с (4 МГц) | $v_{11}^I$ , м/с (4 МГц) | $R_a$ , МОм |
|---------------------|-------------|-----------------------------|------------------------------------|---------------------------------|-----------------------|-----------------------------|--------------------------|-------------|
| Вода                | 81          | 1000                        | 2.2                                | 2                               | 5                     | 1483                        | 1414                     | 0.07        |
| Спирт этиловый 95%  | 24          | 800                         | 1.1                                |                                 |                       | 1180                        |                          |             |
| Спирт этиловый 71%  | 35          | 850                         |                                    | 1.45                            | 10                    |                             | 1346                     | 0.101       |
| Изопропиловый спирт | 21          | 800                         |                                    | 1.14                            | 11                    |                             | 1194                     | 0.28        |
| Ацетон              | 21          | 790                         | 1.12                               | 1.22                            | 11                    | 1192                        | 1243                     | 0.45        |
| Жидкий парафин      | 3.5         | 826                         | 1.66                               | 1.35                            | 500                   | 1420                        | 1278                     | 1.1         |
| Керосин ТС-1        | 3.5         | 750                         | 1.26                               | 1.1                             | 50                    | 1295                        | 1211                     | 0.31        |
| Уайт-спирит         | 3.4         | 790                         |                                    | 1.05                            | 5                     |                             | 1025                     | 0.22        |

**Таблица 3.** Полученные и измеренные значения емкостей для исследуемых жидкостей.

| Жидкость            | $\epsilon'$ | $\rho'$ , кг/м <sup>3</sup> | $C_0^m$ , пФ | $C_0$ , пФ | $C_0^I$ , пФ | $C_a$ , пФ | $C_0 + C_0^I + C_a$ , пФ | $C_0^{lm}$ , пФ |
|---------------------|-------------|-----------------------------|--------------|------------|--------------|------------|--------------------------|-----------------|
| Свободный резонатор |             |                             | 12.7         | 11.82      | 0            | 0          | 11.82                    |                 |
| Вода                | 81          | 1000                        | 12.7         | 11.82      | 2.7          | 13.41      | 27.93                    | 27.94           |
| Спирт этиловый 71%  | 35          | 850                         | 12.7         | 11.82      | 2.7          | 4.43       | 18.95                    | 19.13           |
| Изопропиловый спирт | 21          | 800                         | 12.7         | 11.82      | 2.8          | 1.63       | 16.25                    | 16.15           |
| Ацетон              | 21          | 790                         | 12.7         | 11.82      | 2.83         | 1.82       | 16.47                    | 16.5            |
| Жидкий парафин      | 3.5         | 826                         | 12.7         | 11.82      | 0.9          | 0.1        | 12.82                    | 12.85           |
| Керосин ТС-1        | 3.5         | 750                         | 12.7         | 11.82      | 1.12         | 0.1        | 13.04                    | 12.84           |
| Уайт-спирит         | 3.4         | 790                         | 12.7         | 11.82      | 1.13         | 0.12       | 13.07                    | 12.84           |

результате фиттинга, и ее измеренное значение  $C_0^m$ . Приведены также полученные в результате фиттинга добавочные емкости  $C_a$  и  $C_0^I$  и измеренное значение емкости резонатора  $C_0^{lm}$ , погруженного в жидкость. Поскольку все теоретически определяемые емкости ( $C_0$ ,  $C_0^I$ ,  $C_a$ ) соединены параллельно в эквивалентной схеме на рис. 4, в табл. 3 представлена также их сумма. Из табл. 3 видно, что сумма рассчитанных емкостей  $C_0$ ,  $C_0^I$ ,  $C_a$  практически равна измеренному значению емкости  $C_0^{lm}$ .

На основании полученных результатов можно заключить, что определение модуля упругости и коэффициента вязкости жидкости, в которую погружен резонатор, возможно на основе анализа его эквивалентной схемы, представленной на рис. 4. Эта схема учитывает тот факт, что контактирующая жидкость приводит не только к появлению добавочного сопротивления и добавочной емкости в первичной цепи, но и к изменению эффективной площади электродов.

## 5. ОПРЕДЕЛЕНИЕ МАТЕРИАЛЬНЫХ КОНСТАНТ ПРОВОДЯЩИХ И ВЯЗКИХ ЖИДКОСТЕЙ

### 5.1. Приготовление смесей жидкостей

Для проведения исследований по влиянию проводящих и вязких жидкостей на характеристики резонатора из лангасита, возбуждаемого продольным

электрическим полем и работающего на продольной акустической волне, были изготовлены образцы смеси воды и глицерина с объемными концентрациями глицерина  $\beta$  в воде: 0, 44, 65, 75% с различными проводимостями. Для получения фиксированного значения проводимости образца жидкости в него добавлялось определенное количество NaCl с последующим перемешиванием на магнитной мешалке в течение 1 часа. Определение проводимости полученных образцов осуществлялось при помощи кондуктометра (HI8733, HANNA Instruments, Woonsocket, RI, USA). Было изготовлено двадцать различных образцов смесей с проводимостями 1.4, 27, 55, 82, 123 мкСм/см. Плотность полученных образцов определялась при помощи аналитических весов (Pioneer PA-214C, OHAUS Corporation, NJ, USA) и прецизионной лабораторной пипетки (Колор, Ленпипет). Диэлектрическая проницаемость определялась с помощью плоского конденсатора по методике, описанной в [33].

### 5.2. Влияние исследуемых жидкостей на характеристики резонатора

Для исследования влияния проводимости и вязкости жидкости на характеристики резонатора с продольным электрическим полем, контейнер с резонатором заполнялся исследуемым образцом жидкости. После этого измерялись частотные зависимости реальной и мнимой частей

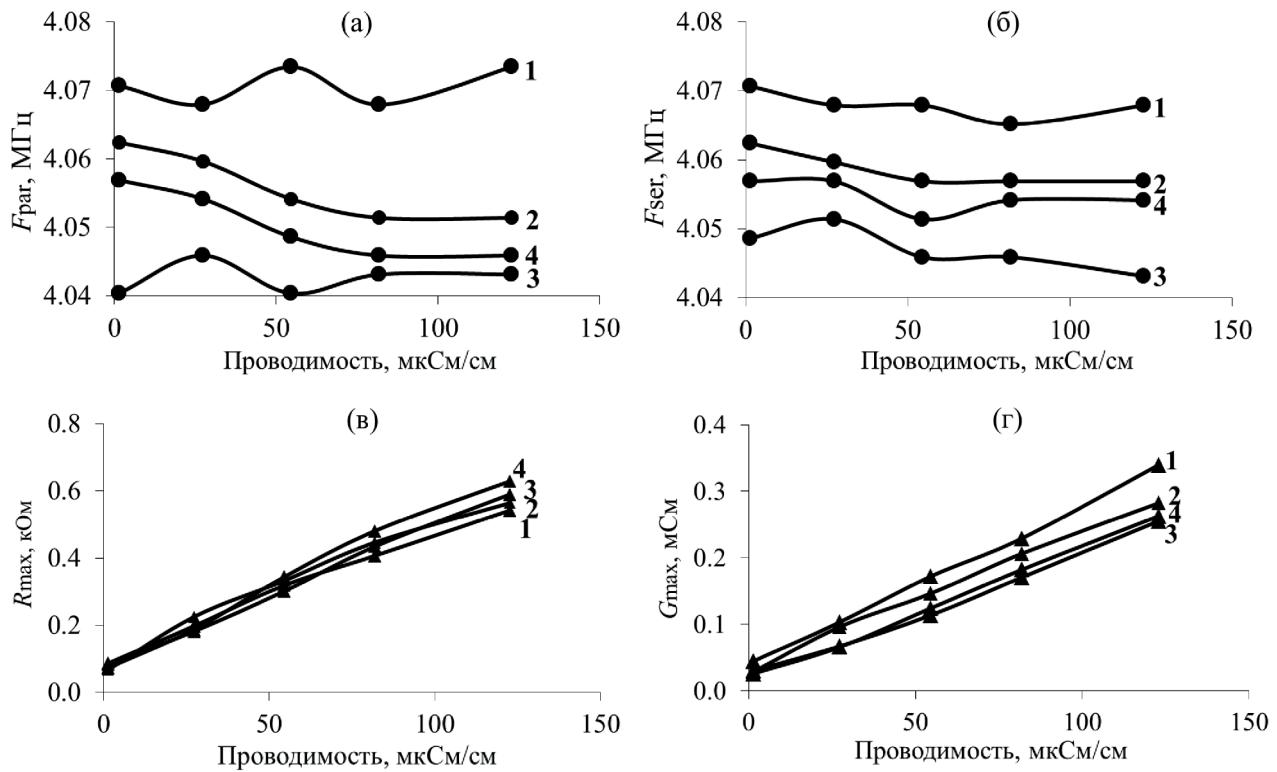


Рис. 6. Зависимости резонансной частоты (а) – параллельного и (б) – последовательного резонансов, (в) – максимальных значений реальной части электрического импеданса и (г) – адmittанта резонатора из лангасита, погруженного в жидкость, от проводимости жидкости (1 – вода, 2 – смесь вода-глицерин  $\beta=44\%$ , 3 – смесь вода-глицерин  $\beta=65\%$ , 4 – смесь вода-глицерин  $\beta=75\%$ ).

электрического импеданса. Измеренные частотные зависимости позволили построить зависимости частот параллельного  $F_{\text{par}}$  и последовательного  $F_{\text{ser}}$  резонансов, а также максимальных значений электрического импеданса  $R_{\text{max}}$  и адmittанта  $G_{\text{max}}$  от проводимости жидкостей. Полученные графики представлены на рис. 6.

Рис. 6 показывает, что в случае с резонатором из лангасита, работающим на продольной акустической волне, при увеличении проводимости образцов жидкости от 1.4 до 123 мкСм/см частоты параллельного и последовательного резонанса изменяются слабо (рис. 6а, 6б) и разброс значений не превышает 3%. Максимальные значения электрического импеданса и адmittанта монотонно увеличиваются с ростом проводимости для всех четырех типов жидкостей (рис. 6в, 6г).

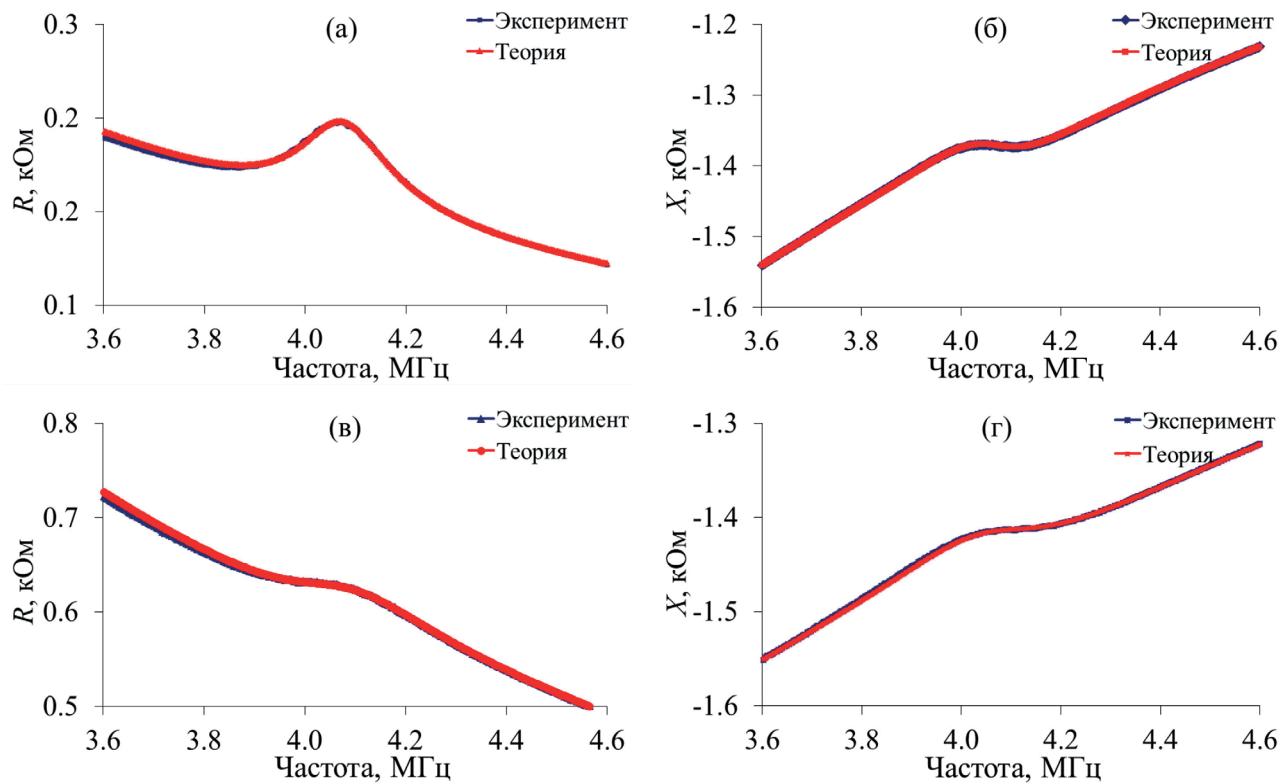
### 5.3. Определение материальных констант проводящих и вязких жидкостей, а также добавочных емкостей и добавочного сопротивления в эквивалентной схеме

Определение модуля упругости  $C_{11}^l$ , коэффициента вязкости  $\eta_{11}^l$  вязких и проводящих жидкостей, а также значений добавочной емкости  $C_a$ , добавочного сопротивления  $R_a$  и эффективной емкости

резонатора  $C_0 + C_0^l$  проводили на основе анализа эквивалентной схемы погруженного в жидкость резонатора (рис. 4). На рис. 7 представлены рассчитанные и экспериментальные частотные зависимости реальной и мнимой частей электрического импеданса резонатора, полностью опущенного в воду с проводимостью 27 мкСм/см (рис. 7а, 7б) и в смесь вода-глицерин с 75% содержанием глицерина в воде с проводимостью 123 мкСм/см (рис. 7в, 7г). Видно, что рассчитанные кривые находятся в хорошем соответствии с экспериментальными.

Полученные значения относительной диэлектрической проницаемости  $\epsilon^l$ , плотности  $\rho^l$ , проводимости  $\sigma^l$ , продольного модуля упругости  $C_{11}^l$ , коэффициента вязкости  $\eta_{11}^l$ , скорости продольной акустической волны  $v_{11}^l$  и добавочного сопротивления  $R_a$  для жидкостей с различной вязкостью и проводимостью представлены в табл. 4. Символом  $\beta$  обозначена относительная объемная концентрация глицерина в воде.

В табл. 5 представлены: собственная емкость свободного резонатора  $C_0$  и ее измеренное значение  $C_0^m$ , добавочные емкости  $C_0^l$  и  $C_a$ , и измеренное значение емкости резонатора, погруженного в жидкость  $C_0^{lm}$ .



**Рис. 7.** Частотные зависимости (а, в) – реальной и (б, г) – мнимой частей электрического импеданса резонатора из лангасита, погруженного (а, б) – в воду с проводимостью 27 мкСм/см, (в, г) – в смесь вода-глицерин  $\beta=75\%$  с проводимостью 123 мкСм/см (синий цвет – эксперимент, красный цвет – теория).

**Таблица 4.** Полученные значения материальных констант, скорости продольной акустической волны и добавочного сопротивления для жидкостей на основе воды и глицерина с различной вязкостью и проводимостью.

| $\beta$ , % | $\epsilon'$ | $\rho'$ , кг/м <sup>3</sup> | $\sigma'$ , мкСм/см | $C_{11}'$ , 10 <sup>9</sup> Па | $\eta_{11}'$ , Па·с | $v_{11}'$ , м/с<br>(4 МГц) | $R_a$ , МОм |
|-------------|-------------|-----------------------------|---------------------|--------------------------------|---------------------|----------------------------|-------------|
| 0           | 80.6        | 1002                        | 1.4                 | 2                              | 0.007               | 1413                       | 0.053       |
|             |             |                             | 27                  | 2                              | 0.007               | 1413                       | 0.01275     |
|             |             |                             | 55                  | 2.02                           | 0.007               | 1420                       | 0.00681     |
|             |             |                             | 82                  | 2.02                           | 0.006               | 1420                       | 0.00491     |
|             |             |                             | 123                 | 2.02                           | 0.006               | 1420                       | 0.003192    |
| 44          | 68.7        | 1100                        | 1.4                 | 3.2                            | 0.1                 | 1705.6                     | 0.11        |
|             |             |                             | 27                  | 3.3                            | 0.1                 | 1732                       | 0.01301     |
|             |             |                             | 55                  | 3.24                           | 0.1                 | 1716                       | 0.00788     |
|             |             |                             | 82                  | 3.22                           | 0.1                 | 1711                       | 0.005364    |
|             |             |                             | 123                 | 3.2                            | 0.1                 | 1705.6                     | 0.00381     |
| 65          | 61.5        | 1167                        | 1.4                 | 3.2                            | 2                   | 1656                       | 0.085       |
|             |             |                             | 27                  | 3.26                           | 2                   | 1671.4                     | 0.02004     |
|             |             |                             | 55                  | 3.26                           | 2                   | 1671.4                     | 0.01031     |
|             |             |                             | 82                  | 3.26                           | 2                   | 1671.4                     | 0.00651     |
|             |             |                             | 123                 | 3.26                           | 2                   | 1671.4                     | 0.00421     |
| 75          | 57.1        | 1191                        | 1.4                 | 3.76                           | 3                   | 1777                       | 0.11        |
|             |             |                             | 27                  | 3.85                           | 3                   | 1798                       | 0.02015     |
|             |             |                             | 55                  | 3.92                           | 3                   | 1814.3                     | 0.00929     |
|             |             |                             | 82                  | 3.92                           | 3                   | 1814.3                     | 0.00604     |
|             |             |                             | 123                 | 3.92                           | 3                   | 1814.3                     | 0.00407     |

**Таблица 5.** Полученные значения добавочных и измеренных емкостей для исследуемых вязких и проводящих жидкостей.

| $\beta, \%$         | $\epsilon'$ | $\rho^l, \text{кг/м}^3$ | $\sigma^l, \text{мкСм/см}$ | $C_0^m, \text{пФ}$ | $C_0, \text{пФ}$ | $C_0^l, \text{пФ}$ | $C_a, \text{пФ}$ | $C_0 + C_0^l + C_a, \text{пФ}$ | $C_0^{lm}, \text{пФ}$ |
|---------------------|-------------|-------------------------|----------------------------|--------------------|------------------|--------------------|------------------|--------------------------------|-----------------------|
| Свободный резонатор |             |                         |                            | 12.7               | 11.82            | 0                  | 0                | 11.82                          |                       |
| 0                   | 80.6        | 1002                    | 1.4                        |                    |                  | 2.7                | 13.47            | 27.99                          | 28.24                 |
|                     |             |                         | 27                         |                    |                  | 2.7                | 13.41            | 27.93                          | 28.26                 |
|                     |             |                         | 55                         | 12.7               | 11.82            | 2.74               | 13.44            | 28                             | 28.27                 |
|                     |             |                         | 82                         |                    |                  | 2.85               | 13.32            | 27.99                          | 28.23                 |
|                     |             |                         | 123                        |                    |                  | 2.85               | 13.35            | 28.02                          | 28.3                  |
| 44                  | 68.7        | 1100                    | 1.4                        |                    |                  | 2.88               | 10.65            | 25.35                          | 25.7                  |
|                     |             |                         | 27                         |                    |                  | 2.88               | 10.63            | 25.33                          | 25.5                  |
|                     |             |                         | 55                         | 12.7               | 11.82            | 2.95               | 10.6             | 25.37                          | 25.5                  |
|                     |             |                         | 82                         |                    |                  | 3.02               | 10.55            | 25.39                          | 25.55                 |
|                     |             |                         | 123                        |                    |                  | 3.08               | 10.56            | 25.46                          | 25.6                  |
| 65                  | 61.5        | 1167                    | 1.4                        |                    |                  | 2.43               | 9.4              | 23.65                          | 23.7                  |
|                     |             |                         | 27                         |                    |                  | 2.1                | 9.66             | 23.58                          | 23.75                 |
|                     |             |                         | 55                         | 12.7               | 11.82            | 2.2                | 9.68             | 23.7                           | 23.9                  |
|                     |             |                         | 82                         |                    |                  | 2.2                | 9.65             | 23.67                          | 23.85                 |
|                     |             |                         | 123                        |                    |                  | 2.45               | 9.54             | 23.81                          | 24.05                 |
| 75                  | 57.1        | 1191                    | 1.4                        |                    |                  | 2.52               | 8.78             | 23.12                          | 23.12                 |
|                     |             |                         | 27                         |                    |                  | 2.5                | 8.73             | 23.05                          | 23.12                 |
|                     |             |                         | 55                         | 12.7               | 11.82            | 2.59               | 8.64             | 23.05                          | 23.18                 |
|                     |             |                         | 82                         |                    |                  | 2.67               | 8.58             | 23.07                          | 23.25                 |
|                     |             |                         | 123                        |                    |                  | 2.67               | 8.65             | 23.14                          | 23.32                 |

Из табл. 5 можно увидеть, что для каждого образца жидкости сумма рассчитанных значений емкостей резонатора  $C_0 + C_0^l + C_a$  в пределах  $\pm 1\%$  соответствует измеренному значению емкости  $C_0^{lm}$ .

## 6. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На примере непроводящих жидкостей с различными диэлектрическими свойствами показана возможность определения материальных констант жидкостей и соответствующих им добавочных емкостей и сопротивления в эквивалентной схеме [32] с учетом изменения эффективной площади электродов. Для проведения исследований использовался резонатор с продольным электрическим полем с двумя круглыми электродами на обеих сторонах диска из кристалла лангасита  $X$ -среза с диаметром электродов существенно меньше, чем диаметр диска. Установлено, что определение материальных констант жидкостей с учетом эффективной емкости резонатора в процессе фиттинга дает в результате относительное различие справочных  $C_{11}^{IR}$  и рассчитанных  $C_{11}^l$  значений модуля упругости исследуемых жидкостей до 18%, а справочных  $v_{11}^{IR}$  и рассчитанных  $v_{11}^l$  значений скорости продольной

акустической волны до 10%. Суммарные результирующие значения емкостей резонатора, погруженного в различные жидкости  $C_0 + C_0^l + C_a$ , где  $C_0$  – собственная емкость свободного резонатора, а  $C_0^l$  и  $C_a$  – добавочные емкости, практически полностью совпадают с соответствующими измеренными в широком частотном диапазоне значениями  $C_0^{lm}$ .

Ранее было сделано предположение о том, что проводимость и диэлектрическая проницаемость жидкости, в которую погружен резонатор, влияют на величину эффективной площади его электродов. В процессе фиттинга авторы ограничились определением эффективной емкости погруженного в жидкость резонатора в первичной цепи его эквивалентной схемы (рис. 4). Было установлено, что добавочная емкость  $C_0^l$  существенно выше для таких жидкостей, как вода, этиловый спирт, ацетон и изопропиловый спирт с высокими показателями относительной диэлектрической проницаемости  $\epsilon'$ , чем для жидкостей с низкой  $\epsilon'$  (керосин, вазелиновое масло, уайт-спирит). С ростом диэлектрической проницаемости жидкости  $\epsilon'$  значение краевой добавочной емкости  $C_a$  увеличивается (рис. 8).

Отработанная в работе [32] методика была использована для определения значений продольного

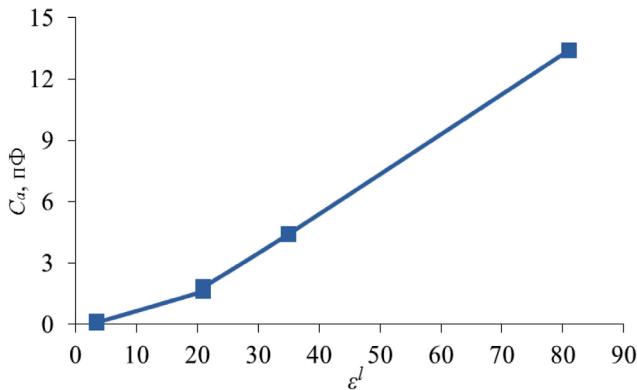


Рис. 8. Зависимость добавочной емкости  $C_a$  от экспериментально полученного значения  $\epsilon'$  для непроводящих жидкостей, представленных в табл. 3.

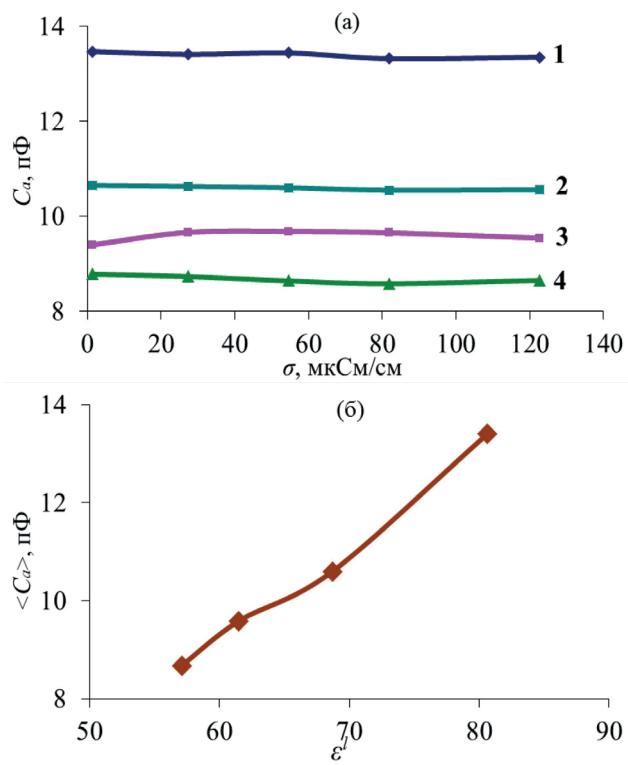


Рис. 9. (а) – Зависимости добавочной емкости  $C_a$  от проводимости жидкостей: 1 – вода, 2 – смесь вода-глицерин  $\beta=44\%$ , 3 – смесь вода-глицерин  $\beta=65\%$ , 4 – смесь вода-глицерин  $\beta=75\%$ . (б) – Зависимость арифметически средних по проводимости значений для каждой смеси добавочной емкости  $\langle C_a \rangle$  от экспериментально полученного значения  $\epsilon'$ .

модуля упругости  $C_{11}^l$ , коэффициента вязкости  $\eta_{11}^l$ , скорости продольной акустической волны  $v_{11}^l$ , а также значений величин добавочных емкостей  $C_0^l$  и  $C_a$  и добавочного сопротивления  $R_a$  для жидкостей с различной вязкостью и проводимостью. В качестве исследуемых жидкостей в работе были

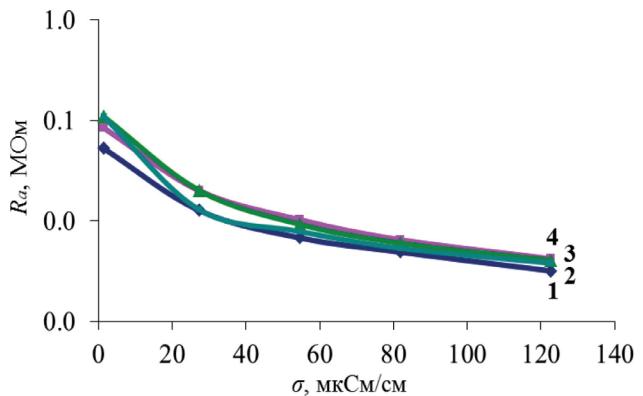


Рис. 10. Зависимости добавочного сопротивления  $R_a$  от проводимости жидкостей: 1 – вода, 2 – смесь вода-глицерин  $\beta=44\%$ , 3 – смесь вода-глицерин  $\beta=65\%$ , 4 – смесь вода-глицерин  $\beta=75\%$ .

использованы образцы смеси воды и глицерина с объемными концентрациями глицерина в воде 0, 44, 65 и 75% с различными проводимостями. Установлено, что и продольный модуль упругости  $C_{11}^l$  и продольный коэффициент вязкости  $\eta_{11}^l$  увеличиваются с ростом концентрации глицерина в воде и в целом слабо изменяются с ростом проводимости для каждой концентрации. Добавочная емкость  $C_a$  практически не изменяется с ростом проводимости жидкостей, но при этом уменьшается с ростом объемной концентрации глицерина в воде и, соответственно, с уменьшением  $\epsilon'$  (рис. 9а). Добавочное сопротивление  $R_a$  уменьшается с ростом проводимости жидкостей (рис. 10).

Усредненная по всем значениям проводимости для каждой концентрации глицерина в воде добавочная емкость  $\langle C_a \rangle$  увеличивается с ростом экспериментально определенной относительной диэлектрической проницаемости  $\epsilon'$  (рис. 9б).

Влияние проводимости и диэлектрической проницаемости жидкости, в которую погружен резонатор, на величину добавочной емкости  $C_0^l$ , участвующей в возбуждении акустической волны, детально не изучалось в данной работе.

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследовано влияние проводящих и непроводящих жидкостей на характеристики пьезоэлектрического резонатора с продольным электрическим полем, погруженного в жидкость. Представлена дополненная теоретическая модель, основанная на анализе эквивалентной схемы погруженного в жидкость резонатора с продольным электрическим полем, учитывающая возможное изменение площади электродов и, соответственно, собственной емкости резонатора. На примере проводящих и непроводящих жидкостей показана универсальность метода определения их материальных констант, таких

как продольный модуль упругости и продольный коэффициент вязкости, скорость распространения продольной акустической волны, а также добавочных параметров эквивалентной схемы. Результаты проведенных экспериментов показали, что в случае с резонатором с продольным электрическим полем из лангасита, при увеличении проводимости воды и смесей вода–глицерин частоты параллельного и последовательного резонансов практически не изменяются. Максимальные значение реальных частей электрического импеданса и адmittанса увеличивались с ростом проводимости жидкостей. Установлено, что продольный модуль упругости и продольный коэффициент вязкости увеличиваются с ростом концентрации глицерина в воде и практически не изменяются с ростом проводимости. Проводимость жидкости практически не влияет на краевую добавочную емкость, но при уменьшении относительной диэлектрической проницаемости жидкости, в которую погружен резонатор, ее значение снижается. Добавочное сопротивление уменьшается с ростом проводимости жидкостей для всех концентраций глицерина в воде.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского Научного Фонда (грант № 23-22-00134)

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Arlett J.L., Myers E.B., Roukes M.L. Comparative advantages of mechanical biosensors // *Nat. Nanotechnol.* 2011. V. 6. P. 203–215.
2. Barlow A.J., Lamb J., Matheson A.J., Padmini P.R.K.L. and Richter J. Viscoelastic Relaxation of Supercooled Liquids // *I. Proc. R. Soc. Lond. A.* 1967. V. 298. P. 467–480. doi: 10.1098/rspa.1967.0115
3. Lin Q., Cai F., Li F., Zhao D., Xia X., Zhou W., Meng L., Zheng H. The compact acoustic liquid sensor based on the circumferential modes of a cylindrical shell // *Sens. Actuators A.* 2020. V. 304. 111843.
4. Kondoh J., Shiokawa S. SH-SAW taste sensor based on acoustoelectric interaction // *Proc. IEEE Int. Ultrasonics Symposium* 31 October–3 November 1993. USA. MD. Baltimore. P. 421–424.
5. Kondoh J., Shiokawa S. New application of shear horizontal surface acoustic wave sensors to identifying fruit juices // *Jpn. J. Appl. Phys.* 1994. V. 33. P. 3095–3099.
6. Kondoh J., Muramatsu T., Nakanishi T., Shiokawa S. Development of surface acoustic wave liquid sensing system and application for Japanese tea measurements // *Proc. IEEE Int. Ultrasonics Symposium* 7–10 October 2001. USA. GA. Atlanta. P. 497–501.
7. Tada K., Nozawa T., Kondoh J. Real time monitoring of methanol concentration using a shear horizontal surface acoustic wave sensor for direct methanol fuel cell without reference liquid // *Jap. J. Appl. Phys.* 2016. V. 37. 07JD15.
8. Kondoh J., Nakayama K., Kuznetsova I. Study of frequency dependence of shear horizontal surface acoustic wave sensor for engine oil measurement // *Sens. Actuators A Phys.* 2021. V. 325. 112503.
9. Zaitsev B.D., Joshi S.G., Kuznetsova I.E., Borodina I.A. Acoustic waves in piezoelectric plates bordered with viscous and conductive liquids // *Ultrasonics*. 2001. V. 39. P. 45–50.
10. Wu J., Zhu Z. Sensitivity of Lamb wave sensors in liquid sensing // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2002. V. 43. P. 71–72.
11. Anisimkin I.V., Anisimkin V.I. Attenuation of acoustic normal modes in piezoelectric plates loaded by viscous liquids // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2006. V. 53. P. 1487–1492.
12. Anisimkin V.I. Sensing properties of the Anisimkin Jr. acoustic modes in uncoated ST-quartz plates // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2013. V. 60. P. 2204–2207.
13. Voronova N.V., Anisimkin V.I. Three-Parameter Liquid Sensor Based on Surface and Plate Acoustic Waves // *Proc. Joint Conf. of the European Frequency and Time Forum and IEEE Int. Frequency Control Symposium* 9–13 July 2017. France. Besancon. P. 343–344.
14. Caliendo C., Hamidullah M. Guided acoustic wave sensors for liquid environments // *J. Phys. D Appl. Phys.* 2019. V. 52. 153001.
15. Anisimkin V.I., Voronova N.V. New modification of the acoustic Lamb waves and its application for liquid and ice sensing // *Ultrasonics*. 2022. V. 116. 106496.
16. McCann D.F., McCann J.M., Parks J.M., Frankel D.J., Pereira da Cunha M., Vetelino J.F. A lateral-field-excited LiTaO<sub>3</sub> high frequency bulk acoustic wave sensor // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2006. V. 56. P. 779–787.
17. Wark M., Kalanyan B., Ellis L., Fick J., Connel L., Neivandt D., Vetelino J. A lateral field excited acoustic wave sensor for the detection of saxitoxin in water // *Proc. IEEE Int. Ultrasonics Symposium* 28–31 October 2007. USA. NY. New York. P. 1217–1220.
18. Vetelino J.F. A lateral field excited acoustic wave sensor platform // *Proc. IEEE Int. Ultrasonics Symposium* 11–14 October 2010. USA. GA. San Diego. P. 2269–2272.
19. French L.A., FitzGerald, M., Vetelino J.F. An Equivalent Circuit Model for a Liquid Loaded Lateral-Field Excited Acoustic Wave Sensor // *Proc. IEEE Int. Ultrasonics Symposium* 19 October 2011. USA. FL. Orlando. P. 1194–1199.
20. Ma T., Wang J., Du J., Yuan L., Qian Z., Zhang Z., Zhang C. Lateral-field-excited bulk acoustic wave sensors on langasite working on different operation modes // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2013. V. 60. P. 864–867.
21. Zaitsev B.D., Shikhabudinov A.M., Teplykh, A.A., Kuznetsova I.E. Liquid sensor based on a piezoelectric lateral electric field-excited resonator // *Ultrasonics*. 2015. V. 63. P. 179–183.

22. *Borodina I.A., Zaitsev B.D., Teplykh A.A.* Influence of the conductivity of a liquid contacting with a lateral electric field excited resonator based on PZT ceramics on its characteristics // *Ultrasonics*. 2020. V. 102. 106059.
23. *Zhao Z., Wang B., Qian Z., Kuznetsova I., Ma T., Yong Y.K.* Design Considerations for Frequency Shifts in a Laterally Finite FBAR Sensor in Contact With the Newtonian Liquid // *IEEE Trans Ultrason, Ferroelectr. and Freq. Cont.* 2020. V. 67. P. 2402–2412.
24. *Wang M., Shi H., Ma T., Qian Z., Kuznetsova I., Yuan L., Wang J., Du J., Zhang C.* High-frequency vibration analysis of LiTaO<sub>3</sub> piezoelectric plates excited by lateral electric fields produced by surface electrodes under viscous liquid loadings for sensing // *Smart Mater. Struct.* 2020. V. 29. 045004.
25. *Zaitsev B.D., Borodina I.A., Teplykh A.A.* Compact liquid analyzer based on a resonator with a lateral excitation electric field // *Ultrasonics*. 2022. V. 126. 106814.
26. *Kanazawa K.K., Gordon J.G. II.* The oscillation frequency of a quartz resonator in contact with a liquid // *Anal. Chim. Acta*. 1985. V. 175. P. 99–105.
27. *Kanazawa K.K., Gordon J.G. II.* Frequency of a Quartz Microbalance in Contact with Liquid // *Anal. Chem.* 1985. V. 57. P. 1770–1771.
28. *Nomura T., Watanabe M., West T.S.* Behavior of piezoelectric quartz crystals in solutions with the applications to the determination of iodide // *Anal. Chim. Acta*. 1985. V. 175. P. 107–116.
29. *Josse F., Shana Z.A., Radtke D.E., Haworth D.T.* Analysis of piezoelectric bulk acoustic wave resonators as detectors in viscous conductive liquids // *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 1990. V. 37. P. 359–368.
30. *Balantine D.S., White R.M., Martin S.J., Ricco A.J., Frye G.C., Zellers E.T., Wohltjen H.* Acoustic Wave Sensors: Theory, Design and Physico-Chemical Applications. USA. NY. New-York: John Wiley & Sons, 1997.
31. *Semyonov A., Zaitsev B., Teplykh A., Borodina I.* Study of the Acoustic Characteristics of Suspensions Based on Glycerol and Synthetic Diamond Microparticles Using a Resonator with a Longitudinal Electric Field // *Acoust. Phys.* 2023. V. 69. № 6. P. 788–797.
32. *Semyonov A., Zaitsev B., Teplykh A., Borodina I.* The effect of the glycerol – Based suspension on the characteristics of resonators excited by a longitudinal electric field // *Sensors*. 2023. V. 23. P. 608.
33. *Semyonov A.P., Zaitsev B.D., Teplykh A.A., Borodina I.A.* Determination of Electrical and Mechanical Properties of Liquids Using a Resonator with a Longitudinal Electric Field // *Sensors*. 2024. V. 24. P. 793. <https://doi.org/10.3390/s24030793>.
34. *Шамсутдинова Е.С., Анисимкин В.И., Фионов А.С., Смирнов А.В., Колесов В.В., Кузнецова И.Е.* Со-вершенствование методов исследования электрофизических и вязкостных свойств жидкостей // *Акуст. журн.* 2023. Т. 69. № 1. С. 56–62.
35. *Зайцев Б.Д., Бородина И.А., Теплыkh А.А., Семёнов А.П.* Определение скорости и затухания акустической волны в жидкостях с различным акустическим импедансом с помощью акустического интерферометра // *Акуст. журн.* 2023. Т. 69. № 4. С. 438–445.
36. *Кольцова И.С., Хомутова А.С.* Акустоэлектронный метод измерения скорости ультразвуковых волн в жидкостях // *Акуст. журн.* 2023. Т. 69. № 3. С. 317–321.
37. *Семёнов А.П., Зайцев Б.Д., Теплыkh А.А., Бородина И.А.* Исследование акустических характеристик супензий на основе глицерина и микрочастиц синтетического алмаза с помощью резонатора с продольным электрическим полем // *Акуст. журн.* 2023. Т. 69. № 6. С. 702–712.
38. *Минаков А.В., Пряжников М.И., Дамдинов Б.Б., Немцов И.В.* Исследование объемной вязкости наносупензий методом акустической спектроскопии // *Акуст. журн.* 2022. Т. 68. № 2. С. 182–189.
39. *Бородина И.А., Зайцев Б.Д., Алсовэйди А.К.М., Караваева О.А., Гулий О.И.* Биологический датчик на основе акустической щелевой моды с использованием микробных клеток для определения ампидиллина // *Акуст. журн.* 2022. Т. 68. № 6. С. 583–588.
40. *Royer D., Dieulesaint E.* Elastic Waves in Solids II. Generation, Acousto-Optic Interaction, Applications. USA. NY. New York. Germany. Berlin/Heidelberg: Springer, 1999. ISBN1439–2674
41. *Kuznetsova I.E., Zaitsev B.D., Shikhabudinov A.M.* Elastic and viscosity properties of Nanocomposite Films Based on Low-Density Polyethylene // *Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* 2010. V. 57. № 9. 2099.
42. *Kuznetsova I., Zaitsev B., Krasnopol'skaya L., Teplykh A., Semyonov A., Avtonomova A., Ziangirova M., Smirnov A., Kolesov V.* Influence of humidity on the acoustic properties of mushroom mycelium films used as sensitive layers for acoustic humidity sensors // *Sensors*. 2020. V. 20. № 9. 2711.
43. *Ганапольский В.В., Касаткин Б.А., Легуша Ф.Ф., Прудько Н.И., Пугачев С.И.* Керамические преобразователи. Справочник. Л.: Судостроение, 1984. 256 с.
44. *Chilla E., Flannery C.M., Frohlich H.-J. and Straube U.* Elastic properties of langasite-type crystals determined by bulk and surface acoustic waves // *J. Appl. Phys.* 2001. V. 90. № 12. 6084.
45. *Григорьев И.С., Мейлихов Е.З.* Физические величины. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.

## Application of a Piezoelectric Resonator to Determine the Parameters of a Contacting Liquid

A. P. Semyonov<sup>a</sup>, B. D. Zaitsev<sup>a,\*</sup>, A. A. Teplykh<sup>a</sup>, I. A. Borodina<sup>a</sup>

*Federal State Budgetary Institution of Science Kotelnikov Institute of Radio Engineering and Electronics of the Russian Academy of Sciences, Saratov Branch, Saratov, Russia, Saratov, 410019*

*\*e-mail: zai-boris@yandex.ru*

The effect of conducting and non-conducting liquids on the characteristics of a piezoelectric resonator with a longitudinal electric field immersed in a liquid was investigated. The resonator, operating on a longitudinal acoustic mode with a resonant frequency of about 4 MHz, was a disk made of X-cut langasite with round electrodes on both sides. The resonator was fixed at the base of a container filled with the liquid under study. Then, the real and imaginary parts of its electrical impedance were measured as a function of frequency using a vector network analyzer. A modernized electromechanical circuit of such a resonator was constructed, taking into account the effect of conductivity and permittivity of the liquid on the change in the effective area of the electrodes. The possibility of determining the elastic modulus, viscosity coefficient of the studied liquid and the values of additional elements of the equivalent circuit by fitting the calculated frequency dependences of the complex electrical impedance of a resonator immersed in liquid to the measured dependences is demonstrated.

**Keywords:** piezoelectric resonator excited by a longitudinal electric field, Mason equivalent circuit, electrical impedance and admittance, conductivity, permittivity, viscosity coefficient and elastic modulus of a liquid