

二维声子晶体传感器应用于葡萄糖浓度的检测研究

谢云涛, 陈晨*, 王鑫宇, 王玉廷

长春理工大学物理学院, 吉林 长春

收稿日期: 2022年1月18日; 录用日期: 2022年3月27日; 发布日期: 2022年4月6日

摘要

本文提出了一种二维缺陷声子晶体传感器设计, 实现了对葡萄糖浓度的检测。传感器设计是汞作为基体, 周期性排列的充水圆形散射体的正方晶格结构, 在共振腔中引入不同浓度的葡萄糖溶液使其在周期性结构中起到缺陷的作用。基于有限元法(FEM)进行了数值模拟, 传感器输入值是葡萄糖的浓度, 输出值是共振峰值频率。结果表明, 共振峰值频率随波导中葡萄糖浓度的变化而显著不同。通过对峰值频率的研究, 该传感器对葡萄糖浓度具有较高的传感性能。葡萄糖浓度为54.6%时灵敏度、Q值分别为66,891 Hz和2235。这些结果表明, 二维缺陷声子晶体传感器具有高灵敏度、高Q值、制作简单、成本低等优点, 是检测葡萄糖的理想选择。该研究成果为二维声子晶体传感器在不使用葡萄糖氧化酶产生催化作用的情况下, 对于血液中葡萄糖浓度的检测提供了理论依据。

关键词

葡萄糖浓度, 声子晶体, 传感器, 共振频率, 线缺陷

Application of Two-Dimensional Phononic Crystal Sensor in Glucose Concentration Measurement

Yuntao Xie, Chen Chen*, Xinyu Wang, Yuting Wang

School of Physics, Changchun University of Science and Technology, Changchun Jilin

Received: Jan. 18th, 2022; accepted: Mar. 27th, 2022; published: Apr. 6th, 2022

Abstract

In this paper, a two-dimensional defect phononic crystal sensor design is proposed to realize the

*通讯作者。

文章引用: 谢云涛, 陈晨, 王鑫宇, 王玉廷. 二维声子晶体传感器应用于葡萄糖浓度的检测研究[J]. 传感器技术与应用, 2022, 10(2): 75-83. DOI: 10.12677/jsta.2022.102010

detection of glucose concentration. The sensor design consists of a square arrangement of mercury as a matrix and a periodic array of circular scatterers filled with water, and the introduction of different concentrations of glucose solutions into the resonant cavity makes it act as a defect in the periodic structure. Numerical simulation was carried out based on the finite element method (FEM), the input value of the sensor was the glucose concentration, and the output value was the resonance peak frequency. The results show that the resonance peak frequency varies significantly with the glucose concentration in the waveguide. Through the study of peak frequency, the sensor has high sensing performance for glucose concentration. When the glucose concentration was 54.6%, the sensitivity and Q values were 66,891 Hz and 2235, respectively. These results indicate that the two-dimensional defect phononic crystal sensor has the advantages of high sensitivity, good performance, simple fabrication, and low cost, and is an ideal choice for glucose detection. The results of this study provide a theoretical basis for the detection of glucose concentration in blood by two-dimensional phononic crystal sensors without the use of glucose oxidase to generate catalysis.

Keywords

Glucose Concentration, Phononic Crystal, Sensor, Resonance Frequency, Line Defect

Copyright © 2022 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

糖尿病是一种常见的内分泌系统疾病[1]，血液中的葡萄糖含量异常升高到一定的量会导致糖尿病及其并发症，如：失明、糖尿病足、肾衰竭、心脏病和中风等。因此，治疗糖尿病病人的关键是实时监测和控制血液中葡萄糖的浓度，这就需要一个便携的、易于使用的、高灵敏度的传感器。葡萄糖传感器是生物传感器中研究最多的酶电极传感器，它可以简单并迅速地测定血糖，对糖尿病的诊断和治疗有着重要的实际意义。现有的葡萄糖传感器大多基于葡萄糖与以下三种酶之一的相互作用：葡萄糖氧化酶、己糖激酶和葡萄糖 1-脱氢酶。葡萄糖氧化酶(GOx)被认为是一种氧化还原酶，具有广泛的生物学和工业应用[2] [3]，可以催化 D-葡萄糖($C_6H_{12}O_6$)氧化为 D-葡萄糖酸内酯($C_6H_{10}O_6$)和过氧化氢(H_2O_2)，从而实现对葡萄糖浓度的检测，但对于酶葡萄糖传感器而言，葡萄糖氧化酶存在易失活、变性的缺点，并且酶的成本较高、固定较难且重现性差。许多液体和生物材料，如血液中的葡萄糖，水中的过氧化氢，水中的酸度等，都可根据物理特性的不同，如折射率、声速、粘度和电导率等特性用不同类型的生物传感器检测。根据液体声学特性(声速和密度)变化制作的传感器是一种新型的传感器平台，液体声学特性的变化比光子晶体中折射率等其他特性的变化明显许多，即声学传感器具有高灵敏度和检测精度小等特点。声子晶体是一种用于控制声波传播的人造周期结构，其最显著的特征是带隙特性，在带隙内声波不能通过声子晶体结构传播，带隙的位置和带宽可以通过改变材料组合、晶格长度、散射体位置来设计。另一方面，通过在完美声子晶体结构中引入缺陷，打破结构的周期性，在带隙内产生共振模式，产生更为丰富的带隙特性。这些不同的特征使声子晶体在许多技术应用中飞速发展，例如噪声抑制[4]、滤波器[5]、光声器件[6]以及传感器应用。在本文中，提出了一种二维缺陷声子晶体传感器用来检测葡萄糖溶液的浓度，液体分析物成为声子晶体的组成部分，充满液体的共振腔在规则结构中产生缺陷的效果，造成带隙中特征频率的不连续。因此，液体声学性质(密度、声速)的变化都会引起缺陷模式频率的变化。本文首先计算和讨

论完美和缺陷声子晶体结构的色散关系，在对传感器设计进行优化后，绘制出声子晶体传感器在大范围的葡萄糖溶液浓度范围内的透射谱，最后我们还根据研究的数值结果讨论了传感器的性能，表明该传感器具有较高的灵敏度和品质因数。

2. 声子晶体的能带计算及有限元仿真

图 1 为二维声子晶体液 - 液周期排列的单胞及布里渊区示意图，是汞作为基体，周期性排列的充水圆形散射体的正方晶格结构，汞和水在常温常压条件下密度分别为 $13,544 \text{ kg/m}^3$ 和 1000 kg/m^3 ，声速分别为 1450 m/s 和 1483 m/s ，晶格常数 a 取 2 mm ，散射体半径 r 取 0.72 mm 。由于二维声子晶体周期结构沿着 X 和 Y 方向是无限大的，所以只需考虑图 1(a)所示的一个单位晶胞即可。采用有限元方法计算了单个晶胞的色散曲线和有限个周期声子晶体的透射谱，不可约布里渊区(IBZ)如图 1(b)所示，用 Bloch-Floquet 方法对单胞不可约布里渊区进行模拟，求解有限元结构的特征模式，得到与给定波矢 k 对应的本征频率，即可绘制出声子晶体的能带结构。图 2(a)所示完美声子晶体单胞的色散曲线由两个频率部分组成：允许频带和禁止频带区域，该结构的带宽约为 389.87 kHz ，禁带频率范围为 $149.2 \text{ kHz} \sim 539.07 \text{ kHz}$ ，这是由于水和汞之间声阻抗失配导致的，图 2(b)是完美二维声子晶体结构透射谱，禁带频率范围内任何波都不能传播，与能带结构表现出很好的一致性。

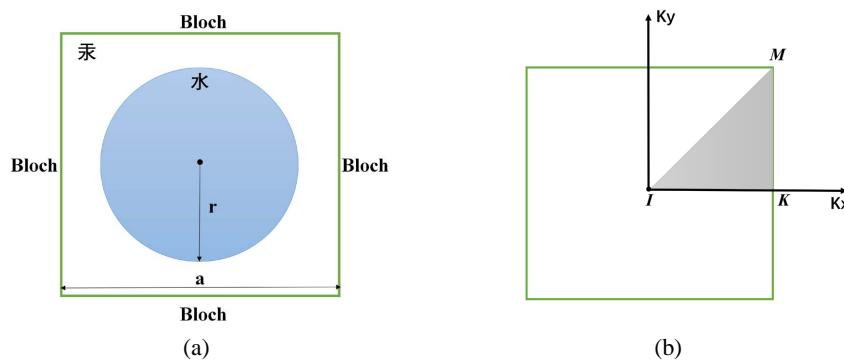


Figure 1. (a) Two-dimensional phononic crystal unit cell; (b) irreducible Brillouin zone
图 1. (a) 二维声子晶体单胞；(b) 不可约布里渊区

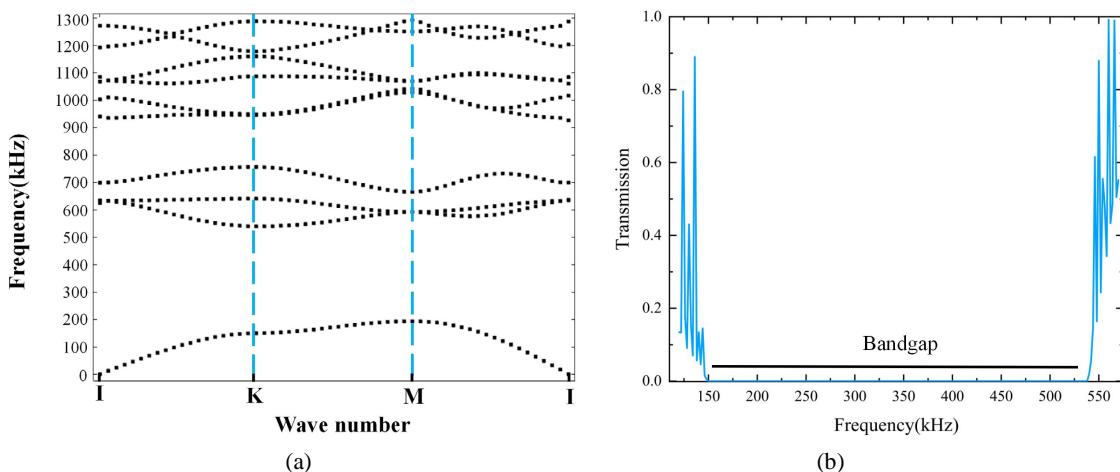


Figure 2. Band diagram of perfect phononic crystal unit cell and corresponding transmission spectrum: (a) Dispersion curve of the intended perfect phononic crystal structure; (b) the transmission diagram for this structure
图 2. 完美声子晶体单胞色散曲线及对应的透射谱图：(a) 单胞色散曲线；(b) 透射谱图

为在周期性声子晶体中传播声波,设计出 9×1 结构的超级单胞,并去掉一行中间孔,得到线缺陷,又称为波导。仿真时,同样将所有平行边界设置为Floquet周期性边界条件,图3为声子晶体线缺陷模式和带隙中产生缺陷模的色散曲线,可以看到在原有的由149.2 kHz到539.07 kHz完全带隙中出现了若干条新的能带,这些能带被称为缺陷带,带的个数为缺陷模式的数量,由于结构中作为波导的线缺陷存在,缺陷带对应的频率可以在高度限制的波导通道中传播。

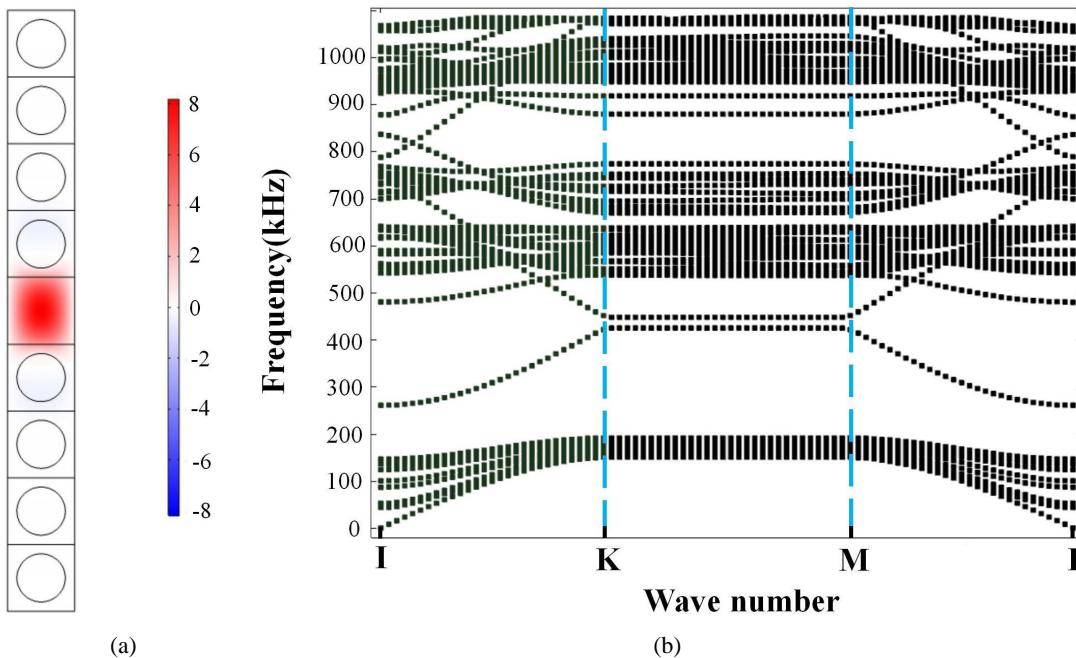


Figure 3. Defect modes and dispersion curve: (a) The defect mode when frequency of 447.9 kHz; (b) dispersion curve of the created waveguide with defect modes

图3. 缺陷模特征模态及色散曲线: (a) 缺陷模频率为447.9 kHz时特征模态; (b) 线缺陷结构色散曲线

3. 利用声子晶体传感器检测葡萄糖溶液的浓度

3.1. 葡萄糖物理性质

本文主要研究的是葡萄糖溶液。根据文献[7]中发表的实验结果,绘制了葡萄糖的精确声学数值,葡萄糖的质量百分比浓度与其密度和声速的关系如图4所示,由于正常人的血糖水平通常在3.9~6.1 mmol/L,超出此范围的葡萄糖浓度可能导致肾功能不全、糖尿病等疾病,所以我们重点关注的浓度范围是6.1~11 mmol/L。可以清楚地看出,随着葡萄糖浓度的增加,声速和密度对浓度变化都非常敏感。当浓度从40%变化到50%时,声速从1699.26 m/s增加到1768.32 m/s,而密度从1168.53 kg/m³下降到1219.2 kg/m³,因此这种变化会对共振峰的位置和传感器的性能产生显著的影响。以此溶液为测试样本对3.2节中设计的声子晶体传感器原型进行性能测试。

3.2. 传感器模型设计

接下来讨论声子晶体谐振腔的声学传感特性,声子晶体的色散关系与其材料、结构参数有关,当结构不变而组元材料参数改变时,声子晶体的能带结构将发生变化,若材料参数变化较小,可将能带结构的变化看作是一种频移。传感器结构示意图如图5所示,最终结构为13列9行,传感器中心带有一个直径为0.7 mm的孔作为谐振腔,腔体中包含待测的液体分析物,相当于成为声子晶体结构的组成部分,且填

充孔类型的声子晶体传感器非常容易制造[8] [9] [10]。将待测液体注入声子晶体谐振腔时，会在完美声子晶体结构中产生缺陷，当缺陷态对应的频率通过传感区域并在腔体中增强时，可在透射谱图中观察到尖锐的共振峰，随着待测液体浓度发生变化，缺陷模的共振特性也会发生改变。通过共振峰值的移动得到谐振腔中待测液体声学特性的变化，进而检测液体分析物的浓度，本文以此为传感器原理设计了用于测量葡萄糖浓度的二维缺陷声子晶体传感器。

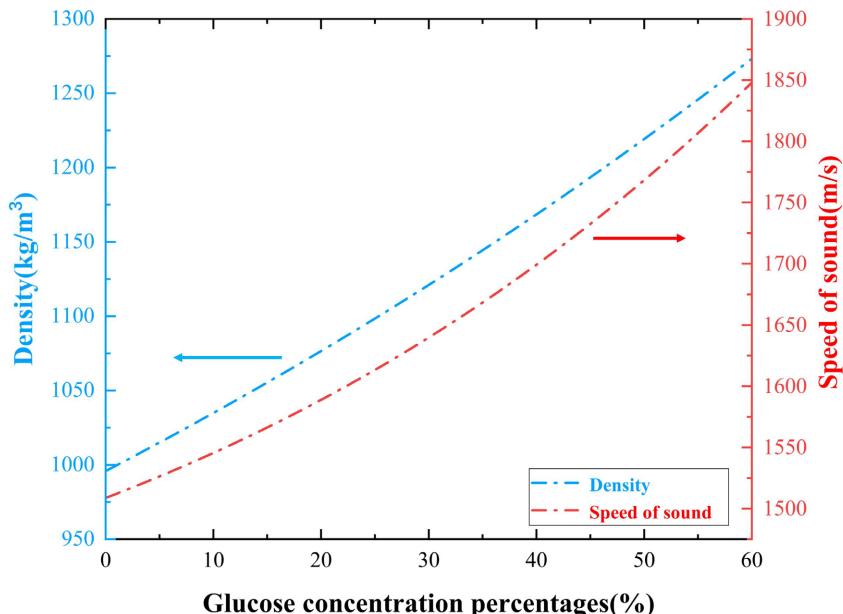


Figure 4. Relationship between acoustic properties of glucose and concentration
图 4. 葡萄糖声学性质与浓度的关系

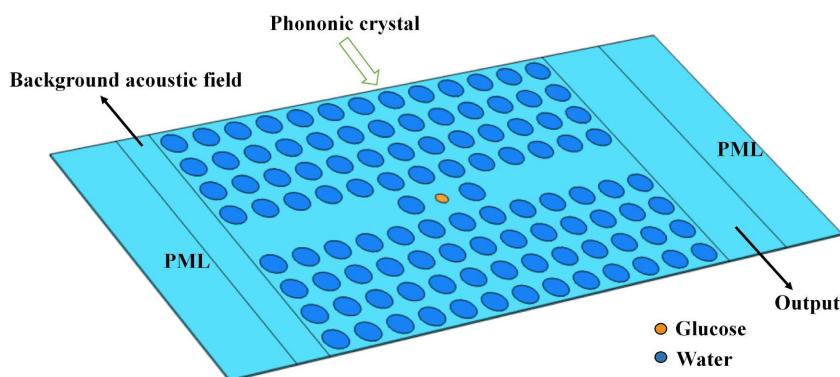


Figure 5. Schematic diagram of two-dimensional defective phononic crystal sensor for simulation
图 5. 用于模拟的二维缺陷声子晶体传感器示意图

3.3. 浓度对透射谱和传感器性能的影响

使用以上结构进行葡萄糖浓度研究，在腔体中加入了不同浓度的葡萄糖溶液，图 6 为不同葡萄糖浓度下的频率透射谱，可以看到缺陷模频率范围发生在带隙中，并验证了共振峰的位置强烈受到浓度变化影响的想法。与 28.9% 葡萄糖浓度相比，60% 葡萄糖浓度下对应的共振峰值频率向高频方向移动，在 1%~10% 浓度中也证实了这一点。

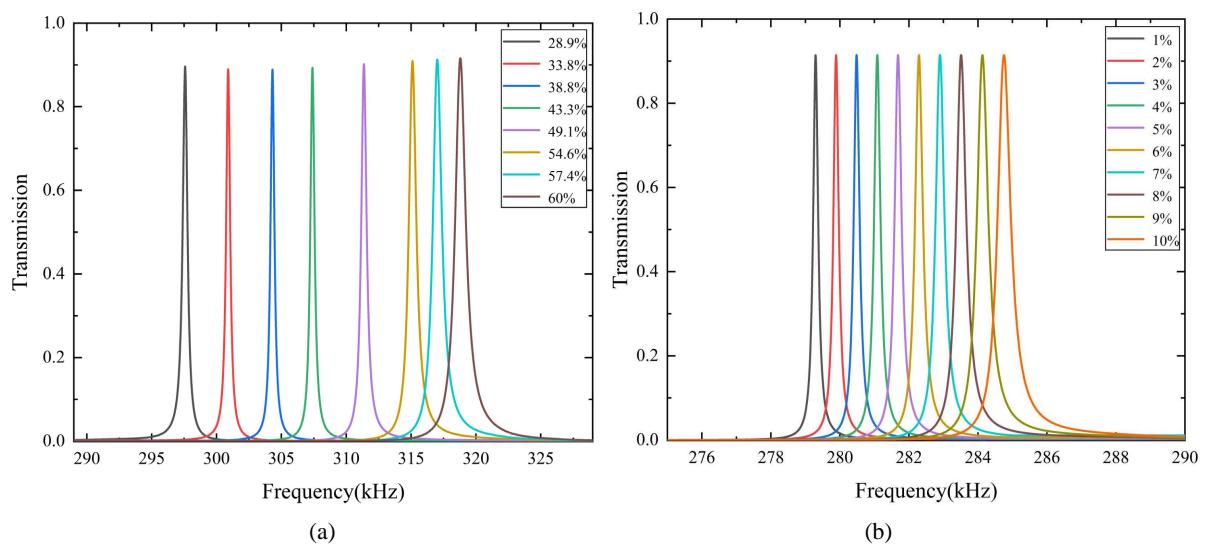


Figure 6. The frequency transmission spectrum of different glucose concentrations: (a) 28.9% to 60% glucose concentrations; (b) 1% to 10% glucose concentrations

图 6. 不同葡萄糖浓度下的频率透射谱: (a) 葡萄糖浓度为 28.9%~60%; (b) 葡萄糖浓度为 1%~10%

图 7 为 28.9% 葡萄糖浓度下透射谱以及输出频率峰值的声波在传感器结构中的传播情况。带隙频率范围的声波可以在传感器输入波导中部分传播, 但只有与腔体频率一致的声波在腔中共振后才能传播到输出端, 也就是说, 共振峰值附近的频率, 例如零透射值点 f_b 不能通过谐振腔, 而共振峰值点 f_a 在腔中共振后可以继续传播。图 8 为共振峰值频率与葡萄糖溶液浓度的变化关系, 可见声共振频率随着葡萄糖浓度的增加而持续增大, 呈线性关系, 该研究结果为利用声子晶体传感器实现血液中葡萄糖浓度的检测提供了理论依据。

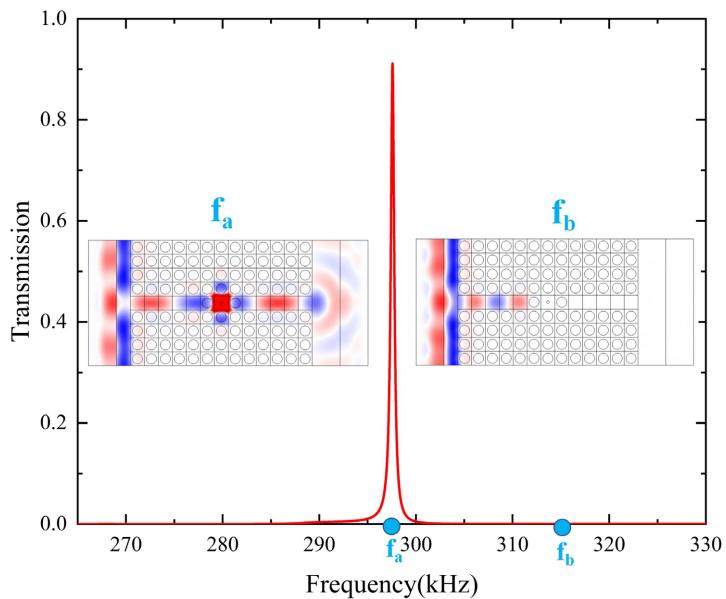


Figure 7. The wave propagation of 28.9% glucose concentration on the resonance frequency (f_a) and zero transmission value frequency (f_b)

图 7. 葡萄糖浓度为 28.9% 时共振频率 f_a 和零透射值 f_b 对应的声波在传感器结构中的传播情况

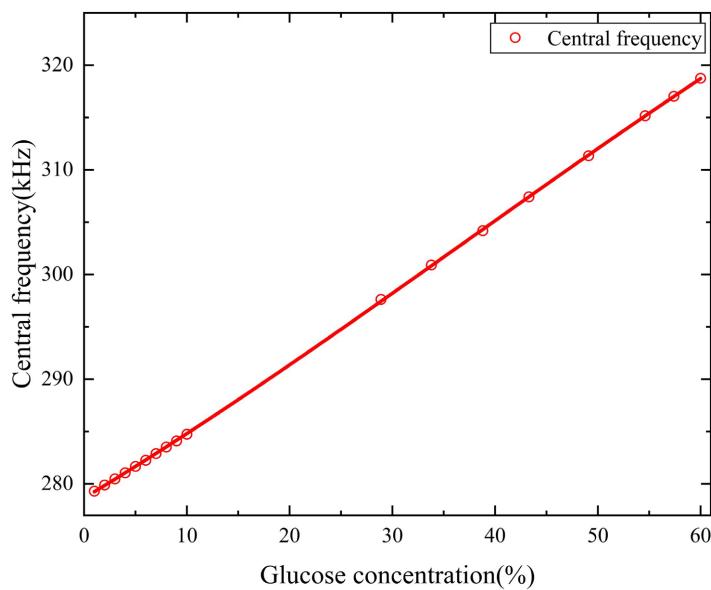


Figure 8. Diagram of sensor resonance peak frequency and mass percentage of glucose solution
图 8. 传感器共振峰值频率和葡萄糖溶液质量百分比的关系图

传感器的性能和许多参数有关，最重要的是传感器浓度灵敏度，灵敏度的计算公式如下：

$$S = \frac{\Delta f}{\Delta x}$$

Δf 是两个共振频率之间的差值， $\Delta f = f_{n\%} - f_{1\%}$ ，其中 $f_{1\%}$ 是葡萄糖浓度为 1% 下的共振频率， $f_{n\%}$ 是每个葡萄糖浓度百分比下的共振频率， $\Delta x = x_{n\%} - x_{1\%}$ 是葡萄糖浓度百分比之间的浓度差。品质因数 Q 受到谐振峰的位置及其半高全宽(FWHM)的强烈影响[11] [12]，Q 值的计算公式如下：

$$Q = \frac{f}{f_{0.5}}$$

表 1 列出了不同葡萄糖浓度下的共振峰值频率、灵敏度、FWHM (半高宽)、Q 值，随着葡萄糖浓度的增加而增大。当浓度从 1% 增加到 2%、10%、38.8%、49.1% 和 60% 时，对应的灵敏度分别为 58,300 Hz、60,444 Hz、65,812 Hz、66,625 Hz、66,852 Hz，当葡萄糖浓度从 1% 增加到 54.6% 时传感器的灵敏度最高，达到 66,891 Hz，这意味着葡萄糖浓度每改变 1% 就会产生约 668.91 Hz 的共振峰移，也就是说对葡萄糖样品的声学参数(密度和声速)中的任何变化都非常敏感，不仅如此，传感器的 Q 值达到了 2235。越窄的半高宽意味着更尖锐的共振峰，并具有较高的 Q 值，从表中可以看出半高宽随浓度的增加而增大，Q 值随着浓度增大而逐渐减小，共振峰的强度几乎不受浓度变化的影响。总体而言，在葡萄糖低浓度和高浓度的情况下传感器都表现出较好的灵敏度和 Q 值。

Table 1. Performance parameters of sensors at different glucose concentrations
表 1. 传感器在不同葡萄糖浓度下的性能参数

Concentration (%)	f (kHz)	Sensitivity (Hz)	f_{FWHM} (kHz)	Q
1	279.310	-	0.087	3210
2	279.893	58,300	0.085	3292
3	280.481	58,550	0.089	3155

Continued

4	281.060	58,333	0.093	3022
5	281.684	59,350	0.091	3095
6	282.263	59,060	0.091	3101
7	282.900	59,833	0.097	2916
8	283.521	60,157	0.104	2726
9	284.103	59,912	0.107	2655
10	284.750	60,444	0.115	2476
28.9	297.622	65,634	0.136	2188
33.8	300.914	65,865	0.136	2212
38.8	304.187	65,812	0.137	2220
43.3	307.420	66,453	0.136	2261
49.1	311.357	66,625	0.141	2208
54.6	315.164	66,891	0.141	2235
57.4	317.020	66,861	0.159	1993
60	318.753	66,852	0.168	1897

最后, 表 2 比较了提出的二维声子晶体传感器与现有传感器关键性能参数, 相比现有的声子晶体液体传感器在性能上有很大的优势, 具有非常高的灵敏度和 Q 值。比较市面上其他类型的葡萄糖传感器和生物传感器[13] [14], 结果表明该传感器在灵敏度、Q 值、半高宽和制造简单性等方面优于用于血糖测量的电化学传感器[15]、等离子体光纤传感器[16]等有酶传感器, 且葡萄糖氧化酶易受环境因素的影响, 酶的固定也是重要难题, 然本文提出的传感器在不使用葡萄糖氧化酶产生催化作用的情况下, 可以成功对血液中葡萄糖浓度进行检测。

Table 2. The performance comparison between the designed sensor and the existing sensor
表 2. 设计的传感器与现有传感器的性能对比

传感器类型	分析物	灵敏度	Q 值
3D-printed phononic-fluidic cavity sensor	NaCl	1.4 KHz	-
2D PnC liquid sensor	H ₂ O ₂	6169 Hz	3383
two-dimensional phononic crystal biosensor	Nai-water	1750 Hz	1197
optical fiber grating sensors	Glucose	0.5 dB/mM	-

4. 结论

本文设计了一种具有共振模式的二维缺陷声子晶体传感器, 腔中填充的葡萄糖溶液是声子晶体的组成部分, 通过研究透射谱中共振峰值的移动得到声子晶体组元材料的声学特性变化, 实现对葡萄糖浓度的检测。在此基础上计算葡萄糖低浓度和高浓度下的传感器性能参数, 当葡萄糖浓度为 54.6%时传感器的灵敏度达到 66,891 Hz, 意味着每改变 1%的浓度可以使共振峰位移 668.91 Hz, 对应的 Q 值达到了 2235。

该传感器具有高灵敏度、高 Q 值、材料成本低、制作简单等优点，且在不需要葡萄糖氧化酶的情况下成功实现对血液中葡萄糖浓度的检测。

参考文献

- [1] Sabokdast, M., Habibi-Rezaei, M., Ferdousi, M. and Poursasan, N. (2015) Protection by Beta-Hydroxybutyric Acid against Insulin Glycation Lipid Peroxidation and Microglial Cell Apoptosis. *DARU Journal of Pharmaceutical Sciences*, **23**, Article No. 42. <https://doi.org/10.1186/s40199-015-0126-5>
- [2] Palleschi, G., Faridnia, M.H., Lubranoang, G.J. and Guilbault, G.G. (1991) Ideal Hydrogen Peroxide-Based Glucose Sensor. *Applied Biochemistry and Biotechnology*, **31**, 21-35. <https://doi.org/10.1007/BF02922122>
- [3] Yoo, E.H. and Lee, S.Y. (2010) Glucose Biosensors: An Overview of Use in Clinical Practice. *Sensors*, **10**, 4558-4576. <https://doi.org/10.3390/s100504558>
- [4] Liu, Z., Zhang, X., Mao, Y., Zhu, Y.Y., Yang, Z., et al. (2000) Locally Resonant Sonic Materials. *Science*, **289**, 1734-1736.
- [5] Han, J., Tang, S., Wang, R. and Wang, W. (2019) Acoustic Wave Transmission Channel Based on Phononic Crystal Line Defect State. *AIP Advances*, **9**, Article ID: 065201. <https://doi.org/10.1063/1.5098819>
- [6] Ma, T.Y., Wang, Y.S. and Zhang, C. (2017) Enhancement of Acousto-Optical Coupling in Two-Dimensional Air-Slot Phoxonic Crystal Cavities by Utilizing Surface Acoustic Waves. *Physics Letters A*, **381**, 323-329. <https://doi.org/10.1016/j.physleta.2016.10.052>
- [7] Randall, C.R. (1932) Ultrasonic Measurements of the Compressibility of Solutions and of Solid Particles in Suspension (Bureau Stand). Ph.D. Thesis, Johns Hopkins University, Baltimore.
- [8] Oseev, A., Zubtsov, M. and Lucklum, R. (2013) Gasoline Properties Determination with Phononic Crystal Cavity Sensor. *Sensors and Actuators B: Chemical*, **189**, 208-212. <https://doi.org/10.1016/j.snb.2013.03.072>
- [9] Oseev, A., Lucklum, R., Zubtsov, M. and Schmidt, M.P. (2017) SAW-Based Phononic Crystal Microfluidic Sensor—Microscale Realization of Velocimetry Approaches for Integrated Analytical Platform Applications. *Sensors*, **17**, Article No. 2187. <https://doi.org/10.3390/s17102187>
- [10] Lucklum, R., Zubtsov, M. and Oseev, A. (2013) Phoxonic Crystals—A New Platform for Chemical and Biochemical Sensors. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, **405**, 6497-6509. <https://doi.org/10.1007/s00216-013-7093-9>
- [11] Aly, A.H. and Elsayed, H. (2019) Transmittance Properties of the One-Dimensional Metallic-Dielectric Photonic Crystals in Near-Zero Permittivity. *Physica Scripta*, **94**, Article ID: 125501. <https://doi.org/10.1088/1402-4896/ab2b7b>
- [12] Ahmed, A.M. and Mehaney, A. (2019) Ultra-High Sensitive 1D Porous Silicon Photonic Crystal Sensor Based on the Coupling of Tamm/Fano Resonances in the Mid-Infrared Region. *Scientific Reports*, **9**, Article No. 6973. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-43440-y>
- [13] Caucheteur, C. and Albertj, J. (2015) Review of Plasmonic Fiber Optic Biochemical Sensors: Improving the Limit of Detection. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, **407**, 3883-3897. <https://doi.org/10.1007/s00216-014-8411-6>
- [14] Mukhin, N., Kutia, M., Oseev, A., et al. (2019) Narrow Band Solid-Liquid Composite Arrangements: Alternative Solutions for Phononic Crystal-Based Liquid Sensors. *Sensors*, **19**, Article No. 3743. <https://doi.org/10.3390/s19173743>
- [15] Jina, A., Tierney, M.J., Tamada, J.A., et al. (2014) Design, Development, and Evaluation of a Novel Microneedle Array-Based Continuous Glucose Monitor. *Journal of Diabetes Science and Technology*, **8**, 483-487. <https://doi.org/10.1177/1932296814526191>
- [16] Rao, G., Guy, H.R., Glikefeld, P., Leung, L. and Potts, R.O. (1995) Reverse Iontophoresis: Noninvasive Glucose Monitoring *In Vivo* in Humans. *Pharmaceutical Research*, **12**, 1869-1873. <https://doi.org/10.1023/a:1016271301814>