

УДК 621.38

DOI 10.36910/10.36910/6775-2313-5352-2023-23-07

Лапшуда В.А., Коваль В.М.

Національний технічний університет України «Київський політехнічний інститут імені Ігоря Сікорського», м. Київ, Україна

МОДЕЛЮВАННЯ ВПЛИВУ КОНСТРУКТИВНИХ ПАРАМЕТРІВ НА ХАРАКТЕРИСТИКИ СЕНСОРІВ ВОЛОГОСТІ НА ОСНОВІ НАНОЦЕЛЮЛОЗИ

У роботі проведено моделювання впливу конструктивних параметрів (конфігурації електродів та товщини наноцелюлози) на параметри резистивних та ємнісних сенсорів відносної вологості, в яких наноцелюлоза використовується як підкладка та вологочутливий шар одночасно. Визначено, що оптимальна товщина плівки наноцелюлози для обох типів сенсорів складає 50 мкм. Для резистивних сенсорів використано електроди у конфігурації зустрічно-штирьової ґратки (ЗШГ). Встановлено, що оптимальною відстанню між електродами є 0,4 мм, оскільки така відстань дозволяє отримати сенсор, номінальний опір якого помітно менший у порівнянні з 0,7 мм (1 МОм). Для ємнісних сенсорів було використано конфігурацію електродів у вигляді розгорнутого конденсатора. Встановлено, що оптимальною відстанню між електродами є 0,1 мм, оскільки вона забезпечує крацій відгук (близько 7 пФ), а отже і чутливість.

Ключові слова: наноцелюлоза, гнучкі сенсори, сенсори вологості, моделювання.

Постановка проблеми. У сучасному людському житті сенсори відносної вологості повітря відіграють важливу роль і використовуються у великій кількості різноманітних приладів та систем. Серед них можна виділити наступні області використання сенсорів вологості: сільське господарство, у якому сенсори відносної вологості повітря використовують у теплицях та гідропонних установках для утримання найсприятливіших умов для певних рослин; харчова промисловість, де варто контролювати вологість при певних технологічних процесах, а також при зберіганні товарів; системи розумного дому та клімат-контролю, для створення комфортних умов проживання у кімнаті; медицина, для контролю умов у палатах та інкубаторах; автомобільна промисловість, для вимірювання стану оточуючого середовища всередині та назовні автомобіля [1]–[11]. Останнім часом намітився перехід від твердотільних сенсорів вологості до їх гнучких аналогів. Потреба в гнучких сенсорах вологості виникає в біомедичних застосуваннях, де сенсори використовуються для моніторингу дихання спортсменів під час тренувань або пацієнтів під час лікування/реабілітації [12]–[14]. Дані отримані із сенсорів можуть бути використані для діагностики хвороб, які викликають розлади дихання, до яких відносяться: астма, ожиріння, апное сну, пневмонія, хронічна обструктивна легенева хвороба, коронавірусна хвороба (COVID-19), тощо. Також такі сенсори можливо використовувати для моніторингу рівня зволоженості шкіри людини та для детектування спітніння [1]–[4].

Зазвичай, у якості підкладок для гнучких сенсорів вологості використовують штучні полімери [15]–[20], однак такі прилади потребують утилізації після закінчення терміни їх служби. Тому на сьогодні ведуться роботи по розробці біорозкладних гнучких полімерів, серед яких вирізняється наноцелюлоза (НЦ). На сьогодні існує два підходи у створенні таких сенсорів: drop casting approach, коли вологочутливий шар НЦ наноситься поверх електродної системи, нанесеної на синтетичну підкладку (зазвичай із PI, PET, PE, тощо [15]–[20]) та self-standing approach [3], [6], [12], [21], [22], коли механічна підкладка із НЦ або її композиту використовується як механічний шар та вологочутливий шар одночасно. В межах останнього підходу можна отримати повністю біорозкладний сенсор, для створення якого достатньо на поверхню плівки НЦ нанести електроди. На сьогоднішній день існує деяка кількість експериментальних даних щодо сенсорів вологості на основі НЦ, виготовлених в рамках підходу self-standing approach. Однак залишається невирішеним питання впливу конструктивних параметрів (конфігурації електродів та товщини наноцелюлози) сенсорів вологості на основі наноцелюлози на їх робочі характеристики.

Основне завдання та одержані результати роботи. Метою роботи є визначити вплив конструктивних параметрів сенсорів вологості на основі наноцелюлози (конфігурація та розміри електродів, а також товщина вологочутливої плівки) на їх робочі параметри. Для

досягнення поставленої мети потрібно було: побудувати 3D модель для конфігурацій ЗШГ та розгорнутого конденсатора; за допомогою COMSOL Multiphysics 6 виконати моделювання опору сенсорів на основі ЗШГ в залежності від конструктивних параметрів та зміни питомої провідності наноцелюлози; провести моделювання ємності сенсорів на основі розгорнутого конденсатора в залежності від зміни конструктивних параметрів та відносної діелектричної проникності наноцелюлози; встановити оптимальні величини конструктивних параметрів сенсорів вологості.

Для проведення моделювання були побудовані 3D моделі електродів, нанесених на поверхню діелектричної плівки у реальних розмірах. Фізичні розміри електродів у конфігурації ЗШГ наступні: ширина електродної системи - 8 мм, довжина електродної системи - 10 мм, ширина електрода - 0,5 мм, відстані між електродами змінювалися від 0,4 мм до 0,7 мм з кроком 0,1 мм. Тобто було створено 4 конфігурації електродів з шириною металізації 0,5 мм і відстанями між електродами 0,4 мм, 0,5 мм, 0,6 мм і 0,7 мм, які зображені на рис. 1, а. Відстань, на якій електроди перекривають один на одного, становить 6 мм. Для конфігурації розгорнутого конденсатора фізичні розміри електродної системи такі: ширина електродної системи - 8 мм, довжина електродної системи - 10 мм, ширина кожного електрода - 4 мм. Відстань між електродами змінювалася від 0,1 до 0,3 мм з кроком 0,1 мм, як показано на рис.1, б.

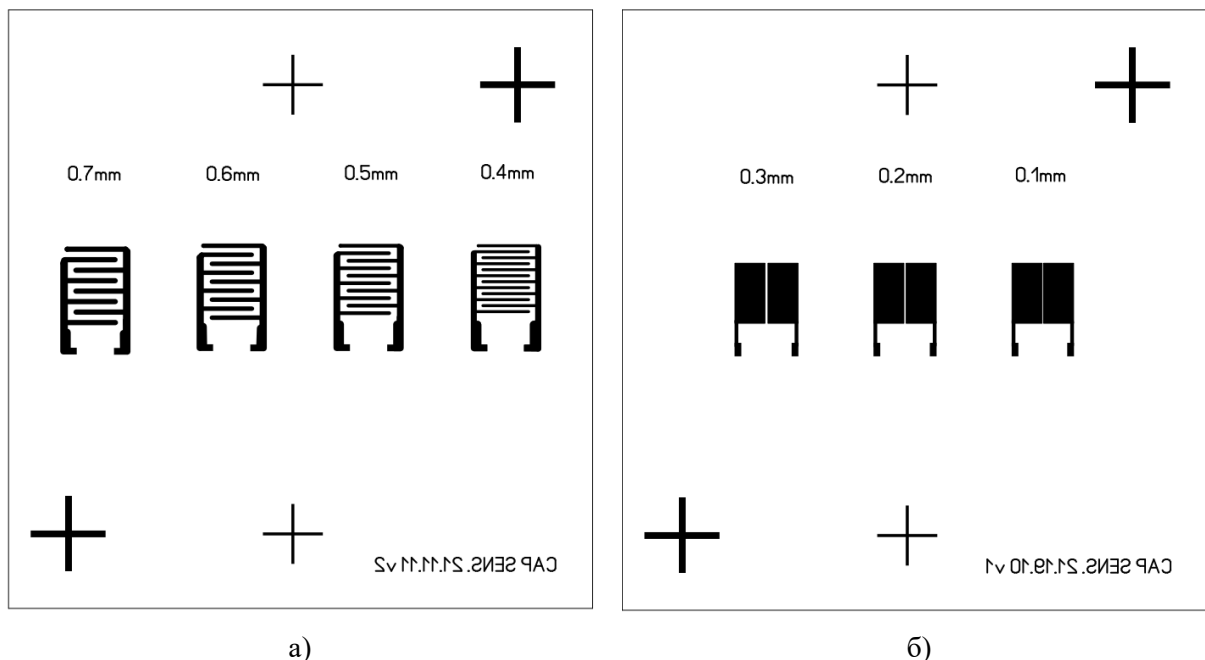


Рисунок 1 – Зображення фотошаблонів тінювих масок для нанесення електродів з конфігураціями ЗШГ (а) та розгорнутий конденсатор (б)

Моделювання впливу конструктивних параметрів ЗШГ та вологочутливої плівки на параметри сенсорів вологості. В даній роботі досліджувався вплив на опір сенсора відстані між електродами, товщини та питомої провідності вологочутливої плівки, яка одночасно слугує підкладкою та вологочутливим шаром. У якості вхідних параметрів для проведення моделювання були використані довідникові відомості про електричну провідність електродів (Ni), інформацію про електропровідність наноцелюлози взято зі статті [23], де стверджується, що провідність абсолютно сухої нанокристалічної целюлози складає $2 \cdot 10^{-7} \text{См/м}$, а у [24], [25] стверджується, що на проміжку вологості повітря від 11 до 98% відгук резистивних сенсорів на основі НЦ може становити 1000 – 10000. Тому для проведення моделювання візьмемо провідність наноцелюлози на проміжку від $2 \cdot 10^{-4} \text{См/м}$ до $2 \cdot 10^{-7} \text{См/м}$. Щодо впливу товщини вологочутливої плівки, то обрано товщини від 10 до 100 мкм з кроком у 10 мкм. Напруга на електродах була обрана 2 В.

На рисунку 2 та 3 показано результати моделювання. Зокрема, на рисунку 2,а та 2,в показано розподіл потенціалу електричного поля для ЗШГ з відстанями між електродами 0,7 і

0,4 мм відповідно. Чітко видно, що потенціал електричного поля поступово змінюється між електродами від напруги 2 В, яка прикладена до електрода ліворуч, до 0 В – потенціалу електрода праворуч. На рисунку 2,б та 2,г показано розподіл напруженості електричного поля між електродами ЗШГ. Так, видно, що електричне поле в основному зосереджено в області у якій електроди перекриваються. Крім того, видно, що напруженість поля між електродами для ЗШГ з міжелектродною відстанню 0,4 мм більша, ніж для ЗШГ з відстанню 0,7 мм. Даний результат узгоджується з виразом для напруженості електричного поля, оскільки напруга, прикладена до обох електродів, однакова, а відстань між ними зменшилася. Також видно, що на кінчиках штирів для обох ґраток спостерігається концентрація напруженості поля. Однак для ґратки з меншою міжелектродною відстанню напруженість поля на кінчиках є меншою.

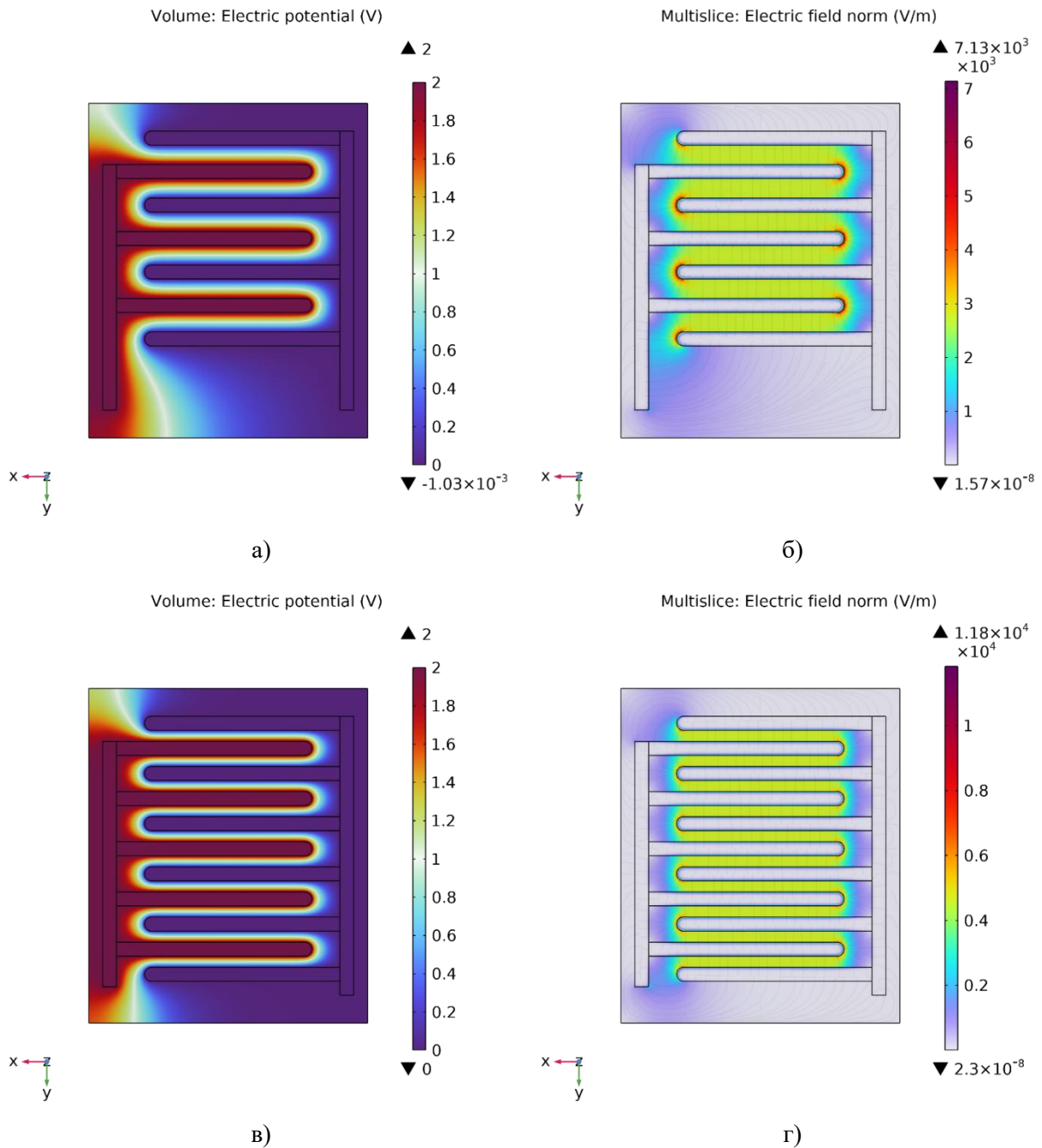


Рисунок 2 – Розподіл потенціалу електричного поля у резистивному сенсорі вологості, виготовленому на основі ЗШГ з відстанню між електродами 0,7 мм (а) та 0,4 мм (в) та розподіл напруженості електричного поля між електродами ЗШГ з відстанню між електродами 0,7 (б) та 0,4 мм (г)

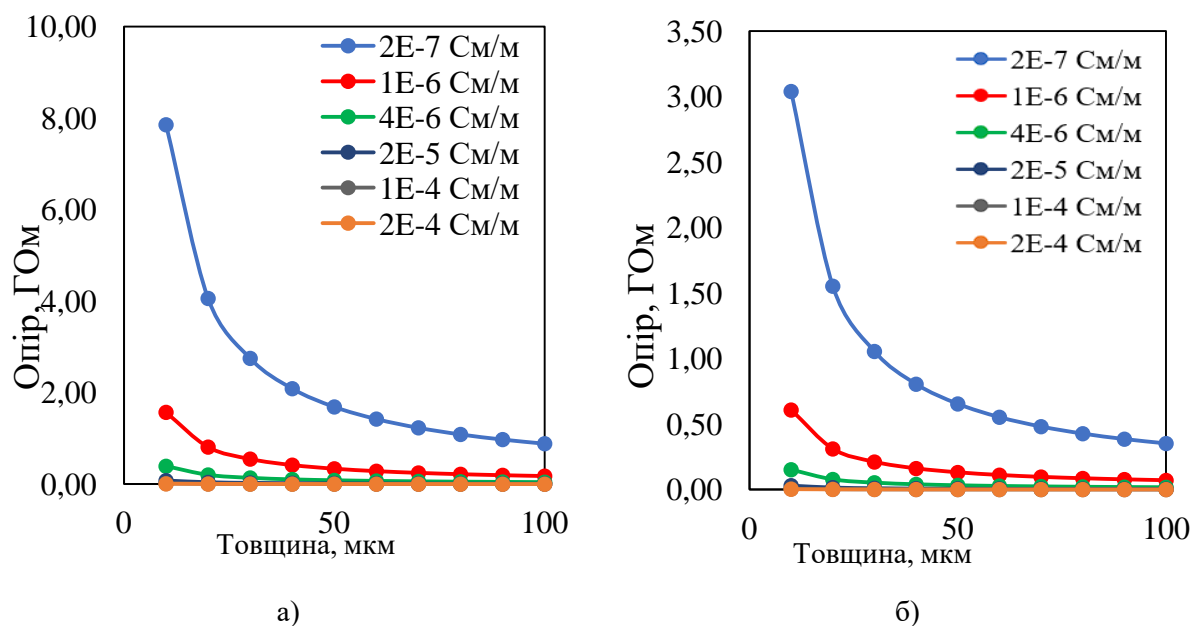


Рисунок 3 – Залежність опору резистивних сенсорів вологості від товщини вологочутливої плівки НЦ за різної її питомої провідності для ЗШГ з відстанню між електродами 0,7 мм (а) та 0,4 мм (б)

На рисунку 3 показано залежність опору сенсорів від товщини вологочутливої плівки (підкладки) НЦ, яка має нелінійний характер, а саме: опір сенсора дуже сильно падає зі зростанням товщини плівки. Якщо порівняти значення опору, наведені на рисунку 3,а для ЗШГ з міжелектродною відстанню 0,7 мм і на рисунку 3,б для ЗШГ з міжелектродною відстанню 0,4 мм, то видно, що зі зменшенням відстані між електродами, опір сенсорів помітно зменшується. Це пов'язано з тим, що при незмінній питомій провідності матеріалу, відстань, яку повинні пройти носії заряду, зменшилася. До того ж, збільшення кількості штирів на ЗШГ призводить до збільшення площі поперечного перерізу звичайного резистора, утвореного цими електродами. Однак, оскільки ці електроди сконструйовані так, що, незалежно від відстані між ними, вони покривають приблизно однакову площу, виникає наступна проблема. У міру наближення електродів збільшується відсоток поверхні, вкритої металом, який, в свою чергу, не пропускає вологу. Таким чином, ЗШГ з меншою відстанню між електродами більше сповільнюватиме процеси адсорбції води, тобто погіршить швидкодію сенсорів.

Також з рисунку 4 видно, що зі зменшенням товщини вологочутливої плівки густина струму в плівці зростає, що може призвести до збільшення виділення джоулевого тепла, що, у свою чергу, призведе до нагрівання плівки. Однак, оскільки опір плівок дуже високий, цей ефект не матиме жодного впливу на плівку через його малі величини. Отже, на основі отриманих результатів можна сказати, що оптимальною відстанню між електродами є 0,4 мм, оскільки такі електроди забезпечують менший номінальний опір сенсорів. З точки зору товщини вологочутливої плівки кращою є товщина в 50 μm , оскільки з подальшим ростом товщини опір спадає не так сильно, але погіршуватиметься швидкодія.

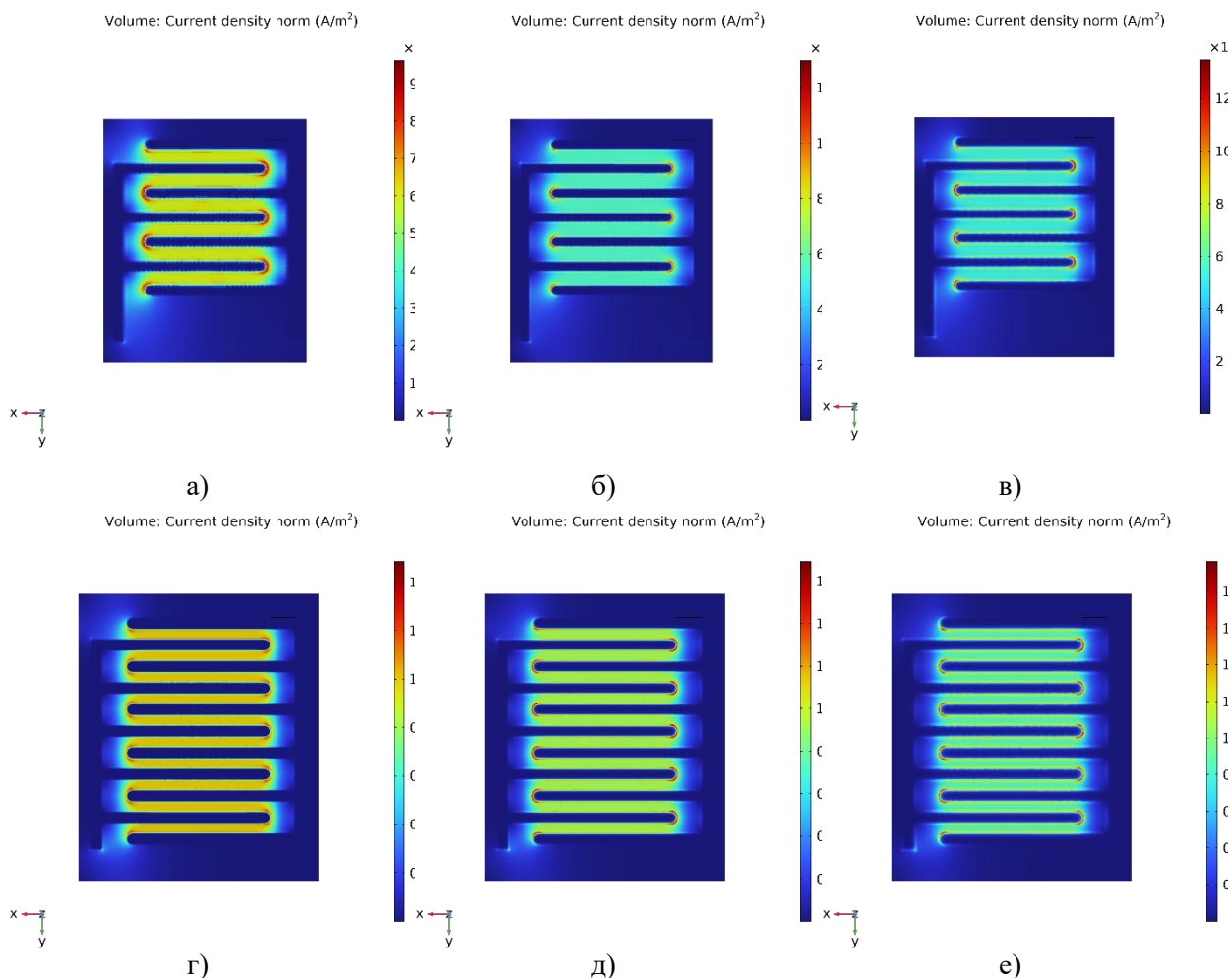


Рисунок 4 – Густина струму у вологочутливій плівці, на яку нанесено ЗШГ з відстанню між електродами 0,7 мм для товщин плівок 10 мкм (а), 50 мкм (б) та 100 мкм (в) та для ЗШГ з відстанню між електродами 0,4 мм для товщин плівок 10 мкм (г), 50 мкм (д) та 100 мкм (е)

Якщо порівняти результати моделювання із експериментальними даними, то побачимо, що порядок величин, отриманий в результаті розрахунків співпадає з результатом експерименту, що наведений в роботах [6], [22].

Моделювання параметрів ємнісних сенсорів вологості на основі електродів з конфігурацією розгорнутий конденсатор. Побудовано 3D модель сенсора на основі електродів з конфігурацією розгорнутого конденсатора. Така конфігурація електродів забезпечує значно меншу активну складову опору в порівнянні з конфігурацією ЗШГ.

Вихідні параметри для моделювання наступні: відносна діелектрична проникність наноцелюлози від 3 до 80, товщина плівки НЦ від 10 до 100 мкм, відстань між електродами від 100 до 300 мкм. У цьому випадку моделювалася лише ємність отриманого конденсатора без урахування впливу провідності на параметри сенсора. Так, на рисунку 5 та 6 показано розподіл потенціалу електричного поля, а також розподіл напруженості електричного поля в об'ємі сенсора. Так, із рисунку 5,б видно, що електричне поле зосереджене лише між електродами сенсора.

На рисунку 6,б показано розріз датчика, перпендикулярний проміжку між електродами, з якого видно, що електричне поле в основному зосереджено між електродами і проникає на певну глибину в підкладку, на якій знаходяться електроди. Отже, зміна діелектричної проникності підкладки вплине на ємність такого конденсатора. Метою цієї моделі є визначення оптимальної товщини діелектричної вологочутливої плівки НЦ та відстані між електродами сенсора. Таким чином, було отримано залежність ємності такого конденсатора від товщини діелектричної плівки та від її діелектричної проникності. Діелектрична проникність була обрана в діапазоні від 3 (еталонне значення діелектричної проникності для сухої НЦ) до 80 (діелектрична проникність води при кімнатній температурі, як значення, вище якого діелектрична проникність плівки бути не може).

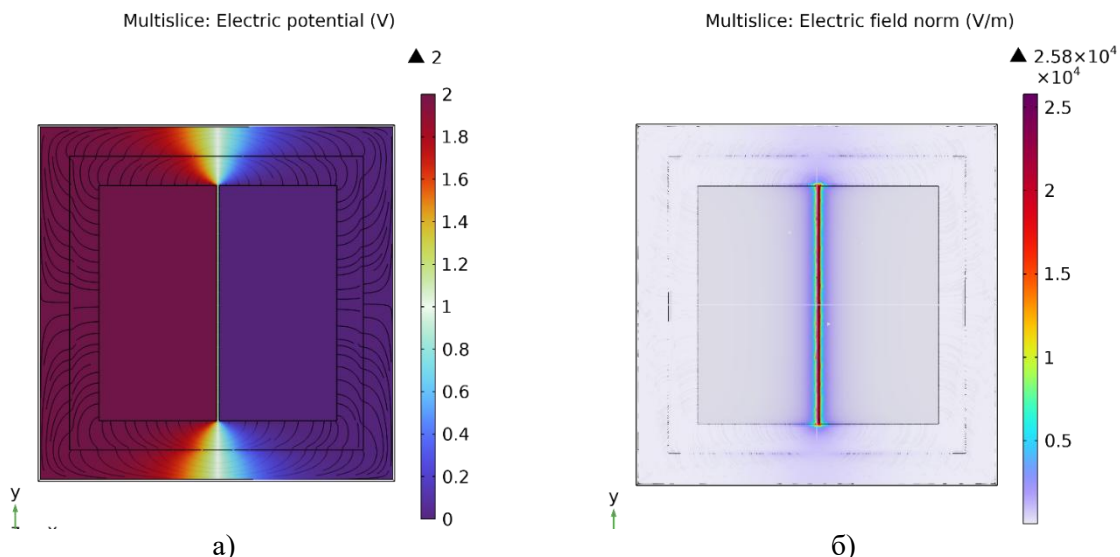


Рисунок 5 – Результати моделювання параметрів ємнісного сенсора вологості: розподіл електричного потенціалу по поверхні сенсора (а) та розподіл напруженості поля по поверхні сенсора (б)

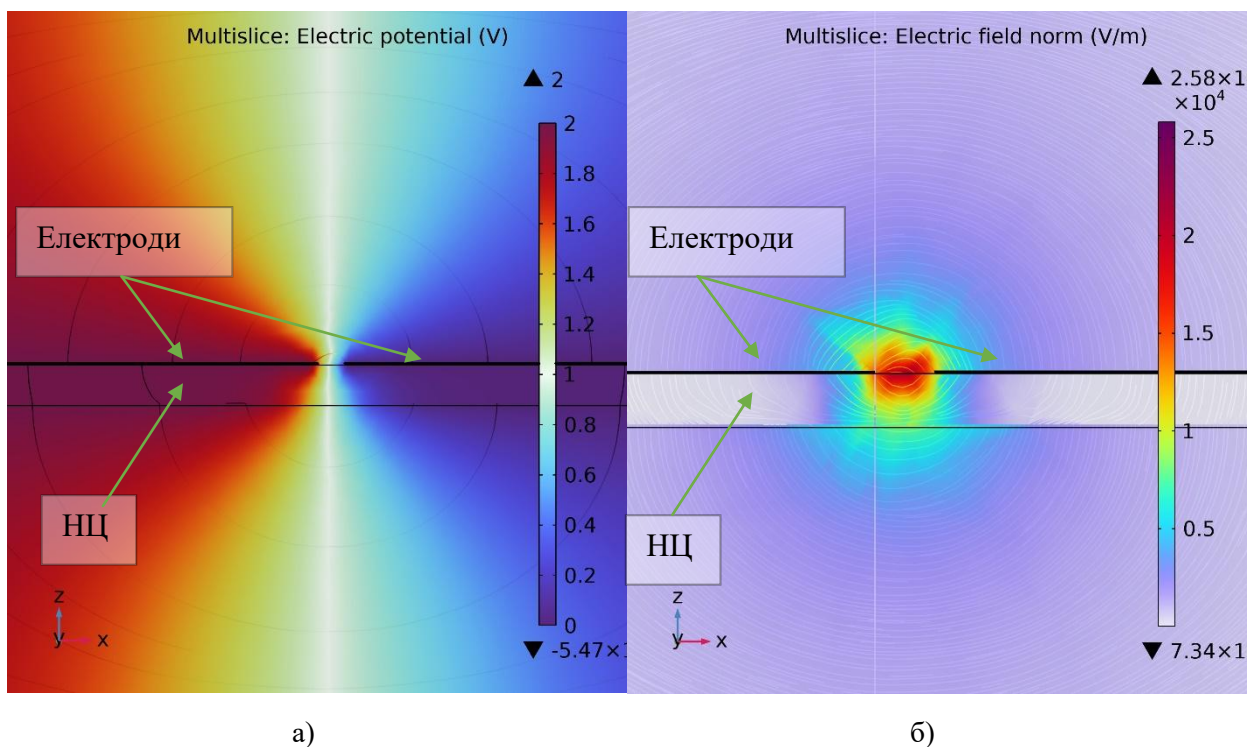


Рисунок 6 – Результати моделювання параметрів ємнісного сенсора вологості: розподіл електричного потенціалу у об'ємі сенсора (а) та розподіл напруженості поля у об'ємі сенсора (б)

В результаті проведення моделювання була отримана площина, зображена на рис.7, яка показує залежність ємності сенсора від товщини діелектричної підкладки та від її діелектричної проникності для двох відстаней між електродами.

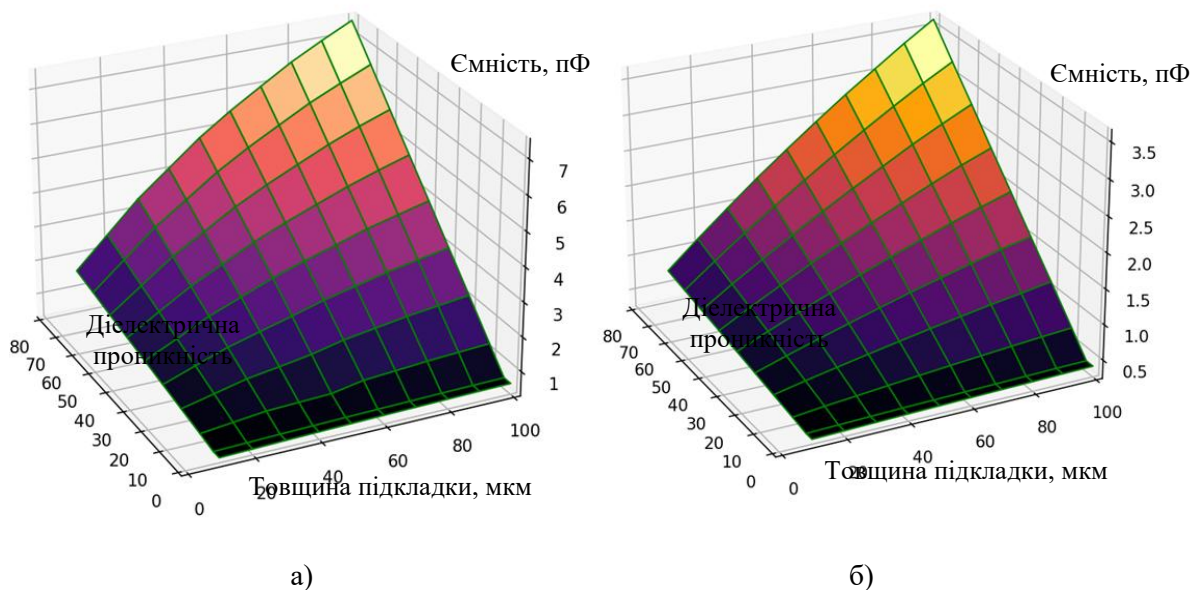


Рисунок 7 – Площина, яка представляє залежність ємності сенсора вологості від товщини діелектричної підкладки та її діелектричної проникності для зразка з відстанню між електродами 0,1 мм (а) та 0,3 мм (б)

Отже, для створення ємнісних сенсорів рекомендовано використовувати електроди у конфігурації розгорнутий конденсатор з мінімальною відстанню між електродами 0,1 мм та товщиною плівки НЦ 50 мкм, що забезпечує більше значення сигналу сенсора. Якщо ж порівняти з експериментальними даними у [3], то побачимо, що на частотах виміру 200-1000 Гц експериментальні сенсори показують значно кращі результати, однак при зростанні частоти вимірювального сигналу відгук сенсорів наближається до розрахованих значень.

Висновки. У роботі проведено моделювання впливу конструктивних параметрів та конфігурації електродів на параметри резистивних та ємнісних сенсорів відносної вологості. При цьому було встановлено, що оптимальна товщина плівки для обох типів сенсорів складає 50 мкм. Для резистивних сенсорів оптимальною відстанню між електродами є 0,4 мм, оскільки така відстань дозволяє отримати сенсор з номінальним опором помітно меншим ніж у 0,7мм та який дорівнює (1МОм). Для ємнісних сенсорів кращою є конфігурація розгорнутого конденсатора з відстанню між електродами 0,1 мм, оскільки вона забезпечує кращий відгук (близько 7 пФ), а отже і чутливість сенсора.

Інформаційні джерела

1. V. A. Lapshuda and V. M. Koval, "Flexible and biodegradable sensors: materials, manufacturing technology and devices on its basis," *KPI Science News*, no. 2, Aug. 2021, doi: 10.20535/kpissn.2021.2.229964.
2. H. Zhao, Z. Wang, Y. Li, and M. Yang, "Single-sided and integrated polyaniline/poly(vinylidene fluoride) flexible membrane with micro/nanostructures as breathable, nontoxic and fast response wearable humidity sensor," *J Colloid Interface Sci*, vol. 607, pp. 367–377, Feb. 2022, doi: 10.1016/j.jcis.2021.08.214.
3. V. Lapshuda, V. Koval, V. Barbash, M. Dusheiko, O. Yaschenko, and O. Yakymenko, "Nanocellulose-Based Composites for Flexible and Biodegradable Humidity Sensors for Breath Monitoring," *IEEE Sens Lett*, vol. 7, no. 10, pp. 1–4, Oct. 2023, doi: 10.1109/LESENS.2023.3311669.
4. H. Tai, S. Wang, Z. Duan, and Y. Jiang, "Evolution of breath analysis based on humidity and gas sensors: Potential and challenges," *Sens Actuators B Chem*, vol. 318, p. 128104, Sep. 2020, doi: 10.1016/j.snb.2020.128104.
5. R.W. Li and G. Liu, *Flexible and Stretchable Electronics*. Boca-Raton: Jenny Stanford Publishing, 2019. doi: 10.1201/9780429058905.
6. Lapshuda V, Koval V, Barbash V, Dusheiko M, Yashchenko O, and Malyuta S., "Flexible Humidity Sensors Based on Nanocellulose," *2022 IEEE 41st International Conference on Electronics and Nanotechnology (ELNANO-2022)*, 2022.

7. H. Koga and M. Nogi, "Cellulose Paper Composites for Flexible Electronics," in *Lignocellulosics*, Elsevier, 2020, pp. 171–191. doi: 10.1016/B978-0-12-804077-5.00011-7.
8. J. van den Brand *et al.*, "Flexible and stretchable electronics for wearable health devices," *Solid State Electron*, vol. 113, pp. 116–120, Nov. 2015, doi: 10.1016/j.sse.2015.05.024.
9. Z. Zhang *et al.*, "Printed flexible capacitive humidity sensors for field application," *Sens Actuators B Chem*, vol. 359, p. 131620, May 2022, doi: 10.1016/j.snb.2022.131620.
10. X. Guan *et al.*, "Flexible humidity sensor based on modified cellulose paper," *Sens Actuators B Chem*, vol. 339, p. 129879, Jul. 2021, doi: 10.1016/j.snb.2021.129879.
11. Z. Zhang *et al.*, "Printed flexible capacitive humidity sensors for field application," *Sens Actuators B Chem*, vol. 359, p. 131620, May 2022, doi: 10.1016/j.snb.2022.131620.
12. J. Wu, Y. Chen, W. Shen, Y. Wu, and J.-P. Corriou, "Highly sensitive, flexible and transparent TiO₂/nanocellulose humidity sensor for respiration and skin monitoring," *Ceram Int*, vol. 49, no. 2, pp. 2204–2214, Jan. 2023, doi: 10.1016/j.ceramint.2022.09.187.
13. M. U. Khan *et al.*, "Biocompatible humidity sensor using paper cellulose fiber/GO matrix for human health and environment monitoring," *Sens Actuators B Chem*, vol. 393, p. 134188, Oct. 2023, doi: 10.1016/j.snb.2023.134188.
14. H. Niu *et al.*, "Ultrafast-response/recovery capacitive humidity sensor based on arc-shaped hollow structure with nanocone arrays for human physiological signals monitoring," *Sens Actuators B Chem*, vol. 334, p. 129637, May 2021, doi: 10.1016/j.snb.2021.129637.
15. V. Lapshuda, V. Koval, M. Dusheiko, and V. Barbash, "Flexible humidity sensors based on nanocellulose for wearable electronics," *Bulletin of Kyiv Polytechnic Institute. Series Instrument Making*, no. 64(2), pp. 42–50, Dec. 2022, doi: 10.20535/1970.64(2).2022.269986.
16. H. S. Nishad, V. Sapner, B. M. Patil, B. R. Sathe, and P. S. Walke, "Flexible and wearable electrochemical biosensors based on 2D materials," in *2D Materials-Based Electrochemical Sensors*, Elsevier, 2023, pp. 355–373. doi: 10.1016/B978-0-443-15293-1.00006-9.
17. R. Samal and C. S. Rout, "Wearable and Flexible Sensors Based on 2D and Nanomaterials," in *Fundamentals and Sensing Applications of 2D Materials*, Elsevier, 2019, pp. 437–463. doi: 10.1016/B978-0-08-102577-2.00012-9.
18. J. Zikulnig, S. Lengger, L. Rauter, L. Neumaier, S. Carrara, and J. Kosel, "Sustainable Printed Chitosan-Based Humidity Sensor on Flexible Biocompatible Polymer Substrate," *IEEE Sens Lett*, vol. 6, no. 12, pp. 1–4, Dec. 2022, doi: 10.1109/LESENS.2022.3224768.
19. X. Li *et al.*, "Facile fabrication of laser-scribed-graphene humidity sensors by a commercial DVD drive," *Sens Actuators B Chem*, vol. 321, p. 128483, Oct. 2020, doi: 10.1016/j.snb.2020.128483.
20. L. Lan, X. Le, H. Dong, J. Xie, Y. Ying, and J. Ping, "One-step and large-scale fabrication of flexible and wearable humidity sensor based on laser-induced graphene for real-time tracking of plant transpiration at bio-interface," *Biosens Bioelectron*, vol. 165, p. 112360, Oct. 2020, doi: 10.1016/j.bios.2020.112360.
21. Лапшуда В.А. *et al.*, "Гнучкі сенсори вологості на основі плівок наноцелюлози для біомедичного застосування," *Перспективні технології та прилади*, no. 22, pp. 81–90, Sep. 2023, doi: 10.36910/10.36910/6775-2313-5352-2023-22-12.
22. В. А. Лапшуда, В. М. Коваль, М. Г. Душейко, В. А. Барбаш, О. В. Яценко, and С. В. Мальюта, "Ємнісні та резистивні сенсори вологості на основі гнучкої плівки наноцелюлози для носимої електроніки," *Известия высших учебных заведений. Радиоэлектроника*, Jul. 2023, doi: 10.20535/S0021347022120019.
23. J. Tritt-Goc, Ł. Lindner, M. Bielejewski, E. Markiewicz, and R. Pankiewicz, "Proton conductivity and proton dynamics in nanocrystalline cellulose functionalized with imidazole," *Carbohydr Polym*, vol. 225, p. 115196, Dec. 2019, doi: 10.1016/j.carbpol.2019.115196.
24. J. R. Ansari, S. M. Hegazy, M. T. Houkan, K. Kannan, A. Aly, and K. K. Sadasivuni, "Nanocellulose-based materials/composites for sensors," in *Nanocellulose Based Composites for Electronics*, Elsevier, 2021, pp. 185–214. doi: 10.1016/B978-0-12-822350-5.00008-4.
25. S. Agate, M. Joyce, L. Lucia, and L. Pal, "Cellulose and nanocellulose-based flexible-hybrid printed electronics and conductive composites – A review," *Carbohydr Polym*, vol. 198, pp. 249–260, Oct. 2018, doi: 10.1016/j.carbpol.2018.06.045.

Lapshuda V.A, Koval V.

National Technical University of Ukraine "Ihor Sikorsky Kyiv Polytechnic Institute", Kyiv, Ukraine

SIMULATION OF THE DESIGN PARAMETERS INFLUENCE ON THE CHARACTERISTICS OF HUMIDITY SENSORS BASED ON NANOCELLULOSE

In the work the effect of design parameters and electrode configuration on the parameters of resistive and capacitive sensors of relative humidity was simulated. Thus, it has been established that for resistive sensors, the best choice is the use of electrodes in the configuration of interdigital electrode. It was determined that the optimal film thickness for both types of sensors is 50 μm . For resistive sensors, the optimal distance between the electrodes is 0.4 mm, since this distance allows to get a sensor whose working range of resistance is significantly smaller compared to 0.7 mm (1 M Ω). For capacitive sensors, the 0.1mm electrode spacing configuration is preferred, as it provides better response (about 7pF) and therefore sensitivity.

Key words: nanocellulose, flexible sensors, humidity sensors, simulation.