文章编号:1000-324X(2022)05-0507-06

软模板法制备高频超声换能器用 1-3 复合压电材料

田俊亭¹,李晓兵¹,丁伟艳¹,聂生东¹,梁柱²

(1. 上海理工大学 健康科学与工程学院, 上海 200093; 2. 中国科学院 上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

摘 要: 医用高频超声成像技术广泛应用于皮肤、眼睛及血管壁等人体组织的精细结构成像。1-3 复合压电材料因 具有较高的机电耦合系数而成为高频超声换能器的核心材料。传统的机械切割-填充、等离子蚀刻等 1-3 复合材料 制备方法成本高、效率低,难以实现工业化制备。本研究提出一种新的基于软模板的高频复合材料制备方法,在获 得高机电耦合系数的同时,实现高性能 1-3 复合压电材料的低成本制备。研究采用微米孔径的软模板实现 PZT 粉 的浆料填充,通过热压烧结获得均匀竖立的 PZT 陶瓷微柱阵列,进而制备出 PZT/环氧 1-3 复合材料。对复合材料 进行系统的机电性能测试,并利用不同方法对复合材料的微结构及其均匀性进行表征。结果表明,软模板法可使压 电微柱具有完整的相结构和较高的成分均匀性,能够实现较高的胚体压缩率,提高陶瓷微柱的致密度,同时形成了 微柱阵列且微柱直径可控制在 70 μm。软模板法有利于在提高复合材料超声频率(30~50 MHz)的同时获得 64%的高机 电耦合系数,为医用高频超声成像以及超声生物显微镜等应用提供了一种高效的 1-3 复合压电材料工业化制备方 法。

关键 词:1-3 复合压电材料;软模板法;高频超声换能器;压电陶瓷

中图分类号: TQ174 文献标志码: A

Fabrication of 1-3 Piezocomposites *via* Soft Mold Method for High-frequency Ultrasound Transducer

TIAN Junting¹, LI Xiaobing¹, DING Weiyan¹, NIE Shengdong¹, LIANG Zhu²

School of Health Science and Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China;
 Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

Abstract: The high-frequency ultrasonic technology has been widely used for the fine structures medical imaging of skin, eye and vessel as its high spatial resolution. 1-3 piezocomposite plays an important part in the high frequency transducer owing to the excellent electromechanical coupling properties of this material even at high frequency. However, its industrial applications were limited by the inefficient fabrication methods and expensive equipment, such as mechanical cutting-filling and plasma/laser etching. In this work, a low-cost and novel soft mold method was developed to fabricate 1-3 piezoelectric composites with high electromechanical coupling coefficient k_t for high frequency ultrasound transducers. The process of soft mold filling, hot-pressed sintering PZT pillars and epoxy curing was ruly carried out. Then, a series of samples with different thicknesses were fabricated and

通信作者: 李晓兵, 副教授. E-mail: xiaobing@usst.edu.cn

收稿日期: 2021-05-06; 收到修改稿日期: 2021-10-14; 网络出版日期: 2021-10-21

基金项目:上海市自然科学基金(19ZR1436200);上海市港澳台合作项目(19440760800)

Natural Science Foundation of Shanghai (19ZR1436200); Science and Technology Commission of Shanghai Municipality (19440760800)

作者简介:田俊亭(1997-),女,硕士研究生.E-mail: 1195309903@qq.com TIAN Junting (1997-), female, Master candidate. E-mail: 1195309903@qq.com

LI Xiaobing, associate professor. E-mail: xiaobing@usst.edu.cn

characterized. It demonstrates that the fabricated PZT pillars with pure rhombohedral phase are homogeneous. Besides, the length to diameter ratio of sintered pillars is 10 : 1 and the k_t of the 1-3 piezocomposite reaches as high as 64% for the 30–50 MHz high frequency transducer. The result indicates that the soft mold method is an economical and effective way to fabricate the 1-3 piezoelectric composites for medical and biological imaging in high frequency ultrasound applications.

Key words: 1-3 piezoelectric composite; soft mold method; high frequency ultrasonic; piezoelectric ceramics

与传统低频 B 超技术相比, 高频超声成像的空 间分辨率可达 40 µm^[1], 能够在更加微观的尺度上 识别人体组织的精细结构和工业零件的微小缺陷, 这使得医用高频超声成像与高频无损检测成为生物 医学和工业检测领域新兴的技术热点^[2]。作为超声 换能器核心的压电材料, 其机电耦合系数 k 决定了 换能器的电-声转换效率,但k随着频率的升高而逐 渐降低, 这限制了压电材料在高频超声技术中的应 用。1-3 复合压电材料因纵向振动模式具有较高的 机电耦合系数^[3]而成为实用化高频超声(>30 MHz)的 最优选择。一方面,1-3复合压电材料具有压电各向 异性和高的机电耦合系数, 可使高频超声换能器获 得高灵敏度、大带宽和窄脉冲;另一方面,1-3复合 压电材料具有更低的声阻抗, 更易与人体进行声学 匹配^[4],降低了高频微型超声探头的制备难度。因此, 高频 1-3 复合压电材料的高效制备成为高频超声工 业化应用的技术关键^[5]。

目前,国际上发展了多种 1-3 复合压电材料制 备方法, 主要包括机械切割-填充法^[6-7]、等离子/激 光刻蚀法^[8]、Si 模板法^[9]以及压电纤维法^[10]等。其 中, 机械切割-填充法的优点是制备过程简单, 可用 于压电单晶材料,但其制备效率较低,且切割的刀 缝宽度下限为 12 µm, 限制了高频复合材料中压电 相比例的提升。此外, 无机压电材料由于脆性, 也很 难制备出高长径比的压电微柱。因此,这种方法在 获得谐振频率大于 30 MHz、综合性能优异的压电复 合材料方面不具优势。等离子/激光刻蚀法因易做到 压电柱尺寸小、排列规则紧密、可应用于单晶等优 点而被广泛应用于实验室制备高频超声 1-3 复合材 料,但刻蚀深度浅、存在刻蚀倾角以及设备昂贵等 缺点又限制了其工业化应用。压电纤维法由于纤维 的取向一致性控制难度较大,使其压电性能难以 提高。

模板法因其成本低、易于大规模工业化生产等 优点而成为备受重视的压电复合材料制备方法。但 传统的硬模板法(如 Si 模板)因模板的不可压性,难 以烧结获得致密度足够高的压电相。Li 等^[11]采用光 刻的硅片作为模板,将 PZT 纳米粉注入微孔,然后 采用热等静压烧结制备出微结构完整的压电柱阵 列,压电柱的直径达到了 7 μm^[12]。然而, Si 模板的 不可压缩性使得陶瓷微柱的烧结致密度低,难以获 得较高的压电性能。

本研究提出了一种新的基于软模板的 1-3 复合 材料制备方法。首先,利用软模板的可压缩性在软 模板保护下实现压电微柱的烧结,从而提高压电相 致密度;同时,通过模板微孔设计控制压电柱的直 径、间距及排列方式,调控微结构;然后,进行材料 的性能测试和结构表征。该过程主要有两个难点: 一是将直径几十微米、长径比大于 10 的压电微柱烧 结并竖立在基底上,形成均匀排列的阵列;二是在 软模板法烧结过程中使压电柱致密化,并获得高的 压电性^[13]。

1 实验方法

1.1 复合材料结构设计

1-3 复合材料的性能主要由压电陶瓷相的结构 决定,其结构涉及压电柱的直径、柱间距、微柱长 径比以及排列方式等。本研究采用具有准同型相界 (MPB)组分的锆钛酸铅(Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O₃, PZT)陶瓷作 为压电相,根据超声换能器的使用频率和机电性能 确定复合材料的谐振频率、机电耦合系数等,进而 设计 1-3 复合材料的微结构。设计结果为复合材料 的厚度1为50~450 μm,压电柱之间的平均空隙尺寸 *ā*为 30 μm,压电柱的直径为 70 μm。

1.2 软模板法制备

根据 1-3 复合材料的微结构设计,首先采用激 光刻蚀方法制备不同厚度、不同微孔直径的塑料薄 板作为软模板,如图 1(a)所示。软模板厚度在 0.5~ 1.0 mm 之间,微孔直径为 80 μm。将 PZT 粉料填充 进软模板微孔内,如图 1(b)所示。将准同型相界 (MPB)组分的 PZT 粉末(颗粒度为 1~3 μm)分散到粘 合剂溶液中形成 PZT 浆料。在真空环境下将浆料灌



图 1 软模板法制备 1-3 复合压电材料的过程示意图 Fig. 1 Sketch of soft mold method for 1-3 piezocomposites fabrication

注到塑料薄板微孔中,并在常压下干燥使溶剂挥发, 从而形成密度较大的陶瓷微柱前驱体。由于软模板 具有可压性,可对己填充 PZT 粉料的软模板施加垂 直于表面的压力(5.0 MPa、20 min),进一步增大 PZT 粉料柱体的密度,如图 1(c)。将软模板以 50 ℃/h 的 速率升温至 530 ℃并保温 2 h,接着以同样的升温速 率升温至 1150 ℃并保温 1.5 h,完成 PZT 陶瓷微柱 的烧结。最终获得烧结致密的 PZT 陶瓷微柱,如 图 1(d)所示。采用环氧树脂聚合物(Epo-Tek 301-2) 进行填充固化,得到 1-3 型压电复合材料^[14],如 图 1(e)。将样品切割、减薄为不同厚度的薄片,利 用磁控溅射将样品上下表面镀金电极,如图 1(f)。最 后,在硅油保护和室温条件下施加 3 kV/mm 的电场 保持 30 min, 样品极化后进行电学性能测试。

由制备过程可以看出,软模板法制备 1-3 复合 材料可根据不同微结构设计,控制压电相陶瓷微柱 的直径在 10~70 μm 范围内^[15],同时可将陶瓷微柱 之间的间距控制在 5~30 μm。该方法突破了切割-填 充法制备 1-3 压电复合材料中压电柱间距大的限制, 避免了等离子/激光刻蚀法昂贵的设备和时间成本, 制备效率较高,有利于实现大规模工业化制备。

1.3 复合材料压电相的结构

PZT 陶瓷微柱的形貌、尺寸以及在基板上排列 等微结构是决定 1-3 复合材料性能高低的关键,也 是评价软模板法制备效果的直观结果。利用扫描电 镜(SEM)对制备的样品进行表面形貌分析,如图 2(a) 所示。从图中可以看出,陶瓷微柱成功地竖立在 Al₂O₃ 基板上,同时微柱保持了软模板孔径的形状, 形态较完整,平均直径为 70 μm,且整体分布均匀, 陶瓷微柱平均间隙尺寸为 ā~30 μm。图 2(b)显示了压 电微柱的局部结构,陶瓷微柱较为致密,晶粒大小 为 5~10 μm,其长径比达到 10:1,能够满足纵向振 动模式的形状要求^[16]。

陶瓷微柱的化学成分和相结构是其决定压电性 能最本质的因素,准确的化学计量比和均匀的元素 分布有利于确定软模板法最优的制备条件。利用 EDS 能谱测量了陶瓷微柱中 Pb、Zr 沿径向方向的



图 2 软模板法制备的 PZT 微柱

Fig. 2 PZT ceramic pillars prepared *via* soft mold method

(a) SEM image of PZT ceramic pillars; (b) SEM image of the details for local pillars; (c) Distribution of Pb, Zr, Ti elements contents along the radial direction of a pillar; (d) XRD pattern of the PZT pillars

含量,如图 2(c)所示。从压电柱中心到边缘的 35 μm 范围内, Pb、Zr 和 Ti 元素的物质的量含量保持不变, 其平均值分别为 Pb: (104±5)%、Zr: (55±5)%、Ti: (49±5)%。这表明烧结气氛中 Pb 含量充足,使得压 电微柱保持了正常的 PZT 化学计量比。利用 X 射线 衍射仪(XRD)对制备的 PZT 陶瓷柱相结构完整性进 行了分析,衍射谱如图 2(d)所示。衍射峰全部为钙 钛矿结构峰,且峰较尖锐,没有杂峰,这表明烧结 得到了完整的三方相钙钛矿结构(R3m)^[17]。测试结 果显示了软模板法制备的陶瓷微柱阵列在结构上具 有较高的均匀性和完整性。

2 压电复合材料的结构与性能

2.1 压电性能的测量

对软模板法制备的1-3复合压电材料进行介电、 压电性能测量和机电耦合性能测试。结果显示,所 有软模板法制备的 1-3 压电复合材料都表现出明显 的谐振、反谐振阻抗特性, 这表明软模板法能够获 得具有显著压电效应的 1-3 复合材料。图 3 是具有 同一压电柱直径(0.3 mm)不同厚度(0.2~0.45 mm) 1-3 复合材料的阻抗频谱。通过研究其振动模式随 厚度变化的演变规律可知, 当厚度 l=0.45 mm 时, 谐振、反谐振峰明显,且在反谐振频率以上阻抗谱 曲线较为平滑,表明振动模式较纯,这是由于 1-3 复合材料压电微柱长径比较大,属于厚度振动模 式。随着样品厚度减小,谐振、反谐振峰强度开始 减弱,而频率却随之增加。当厚度1减小到0.30 mm 时,开始出现更高谐振频率的振动模式。表1所示 为不同厚度的 6 个 1-3 复合材料样品的微结构尺寸 及其对应的谐振、反谐振性能。随着 1-3 复合材料 厚度减小、其谐振和反谐振频率升高、同时复合材 料频率常数逐渐减小。这是由于在压电柱的长径比 较大时,主要振动模式为纵向长度振动,横向振动 模式较弱。随着厚度减小,谐振频率增大,压电柱长 径比减小,纵向振动和横向振动模式开始出现耦合, 频率常数逐渐降低。

2.2 压电振动模式随厚度的变化

超声换能器的回波灵敏度取决于压电材料的机 电耦合系数,特别是在高频超声换能器中需要高机 电耦合系数的材料。根据 IEEE 标准,厚度振动机 电耦合系数采用公式(1)进行计算^[18]:

$$k_{\rm t} = \sqrt{\frac{\pi}{2} \frac{f_{\rm r}}{f_{\rm a}} \tan\left(\frac{\pi}{2} \frac{f_{\rm a} - f_{\rm r}}{f_{\rm a}}\right)} \tag{1}$$

其中,fr为谐振频率,fa为反谐振频率。图4为不同厚



图 3 不同厚度的 PZT 陶瓷 1-3 复合材料阻抗谱 Fig. 3 Frequency dependent impedances and phase angles of the PZT/Epoxy 1-3 piezocomposites with different thicknesses

表 1 不同厚度 1-3 复合材料的电阻抗性能 Table 1 Electrical impedance property of 1-3 piezocom-

posites of the samples with different thicknesses									
Sample	<i>l</i> /mm	<i>d</i> /mm	<i>ā</i> /mm	f_r/MHz	$f_{\rm a}/{\rm MHz}$	$N/(\text{Hz}\cdot\text{m})$			
1#	0.20	0.30	0.03	6.269	5.493	1254			
2#	0.25	0.30	0.03	5.902	5.28	1476			
3#	0.30	0.30	0.03	5.549	4.99	1665			
4#	0.35	0.30	0.03	5.143	4.62	1800			
5#	0.40	0.30	0.03	4.849	4.306	1940			
6#	0.45	0.30	0.03	4.18	3.65	1881			



图 4 1-3 复合材料的谐振、反谐振频率和机电耦合系数随 厚度的变化

Fig. 4 Thickness dependent resonant, anti-resonance frequencies and electromechanical coupling factors for 1-3 piezocomposite 度 1-3 复合材料的谐振、反谐振频率以及机电耦合 系数随样品厚度的变化关系。随着厚度增加, f_r和 f_a 减小,而纵向振动模式的机电耦合系数 k_t 先减小后 增加。当样品厚度与压电柱尺寸接近时,即压电柱 的长径比接近 1 时,机电耦合系数达到最小;当压 电柱的长径比大于 1 时,机电耦合系数随长径比增 大而增加。通过外延线性拟合可得,当长径比大于 3 时,复合材料的纵向振动机电耦合系数可达到 75%。

2.3 医用高频超声换能器用 1-3 复合材料性能

以血管内超声成像技术为例,其高频超声换能 器的工作频率在 30~50 MHz 范围, 需制备厚度(即 陶瓷微柱的高度)为40~50 μm 的复合材料。此外,陶 瓷微柱之间的距离也是需要控制的重要参数,因为 当复合材料的谐振频率达到 20 MHz 以上时, βā>1 (其中波矢 $\beta=2\pi/\lambda$, λ 是波长, \bar{a} 是 PZT 陶瓷柱间距), 1-3 复合压电材料的机电耦合系数下降,材料中绝 大部分弹性能集中于聚合物内。一方面, 由于该材 料间隙聚合物与 PZT 陶瓷柱的相速度不同, 使得复 合材料发射或接收的能量大部分保留在材料表面, 复合材料能量转换效率降低;另一方面,当 PZT 陶 瓷微柱直径较小时,极化难度与边缘效应均增加。 因此, 陶瓷微柱间距也是决定 1-3 复合压电材料性 能的重要参数,需要进行优化。本研究利用软模板 法制备获得了长宽为 0.5 mm、厚度为 50 µm 的 1-3 复合材料, 其中陶瓷微柱平均间距为 30 µm, 然后 测量其阻抗谱,如图5所示。

由图 5 可得, 医用高频 1-3 复合压电材料的谐 振频率为 25.2 MHz, 反谐振频率为 31.6 MHz, 根据 IEEE 国际标准计算其机电耦合系数达到 64%, 这比 PZT 单相陶瓷片($k_{t} \sim 50\%$)^[18]增加了 14%。 k_{t} 是衡量 压电复合材料中机械能与电能之间相互转换效率的 物理量^[19], 高 k_{t} 可大幅增加超声换能器的工作带宽。



图 5 软模法制备的高频超声换能器用 1-3 复合材料阻抗谱 Fig. 5 Frequency dependent impedances and phase angles of the 1-3 piezocomposite in medical high-frequency ultrasound transducer

此外, 1-3 复合材料具有更低的机械品质因数, 会导 致高频超声换能器能量转换效率和回波灵敏度增 加。表 2 总结对比了软模板法制备的 1-3 型 PZT5/Epoxy 复合压电材料相关性能, 可以发现, 1-3 型压电复合材料的厚度机电耦合系数相比于传统 PZT 材料有大幅提高, 同时声阻抗降低可显著改善 高频超声换能器的性能。

表 2 高频超声换能器用压电材料的压电、声学性能 Table 2 Piezoelectric and acoustic property of the piezoelectric materials for high-frequency transducers

Material	$f_{\rm a}/{\rm MHz}$	$k_{ m t}$	Q_{m}	Z _a /MRayl
PMNT crystal ^[20]	45.0	0.55	100	37
PZT composite ^[20]	57.5	0.68	-	15.3
PZT-5H	43.7	0.52	65	34
This work	31.6	0.64	72	10.8

3 结论

本研究针对 1-3 型压电复合材料在高频超声换 能器中的应用,发展了一种软模板法热压烧结陶瓷 微柱阵列,进而制备高性能 1-3 复合压电材料的方 法。烧结获得了直径为 70 µm、间距小于 30 µm、 长径比大于 10 的 PZT 陶瓷微柱阵列。SEM、XRD 和 EDS 对压电微柱的结构测试表明 PZT 微柱中元 素含量径向分布均匀、相结构单纯且晶格较完整。 电学性能测试显示,软模板法制备的高频 1-3 复合 压电材料(~30 MHz)的机电耦合系数达到 64%,比 同组分单相 PZT 陶瓷高 14%。因此,软模板法是一 种有效的制备高频 1-3 复合压电材料的新方法。其 制备效率高、成本低,将推动 1-3 复合压电材料在 高频超声技术领域的工业化制备和应用。

参考文献:

- MA X W, CAO W W. Single crystal high frequency intravascular ultrasound transducer with 40 micron axial resolution. *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control*, 2020, 67(4): 810–816.
- [2] LI S, TIAN J, JIANG X. A micromachined PMN-PT single crystal composite circular array for intravascular ultrasound imaging. *Journal of Engineering and Science in Medical Diagnostics and Therapy*, 2019, 2(2): 021001.
- [3] XU J L, ZHANG Z, LIU S X, *et al.* Optimizing the piezoelectric vibration of Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-0.25PbTiO₃ single crystal by alternating current polarization for ultrasonic transducer. *Applied Physics Letters*, 2020, **116(20)**: 202903.
- [4] SMITH W A, AULD B A. Modeling 1-3 composite piezoelectrics: thickness-mode oscillations. *IEEE Transactions on Ultrasonics*, *Ferroelectrics, and Frequency Control*, 1991, **38**(1): 40–47.
- [5] LEE J S, MOON J Y, CHANG J H. A 35 MHz/105 MHz

dual-element focused transducer for intravascular ultrasound tissue imaging using the third harmonic. *Sensors*, 2018, **18**(7): 2290.

- [6] ZHOU D, CHEUNG K F, CHEN Y, et al. Fabrication and performance of endoscopic ultrasound radial arrays based on PMN-PT single crystal/epoxy 1-3 composite. *IEEE Transactions on Ultra*sonics, Ferroelectrics, and Frequency Control, 2011, 58(2): 477–484.
- [7] WANG J S, CHEN M Z, ZHAO X Y, *et al.* Fabrication and high acoustic performance of high frequency needle ultrasound transducer with PMN-PT/Epoxy 1-3 piezoelectric composite prepared by dice and fill method. *Sensors and Actuators A: Physical*, 2021, **318**: 112528.
- [8] CHEN R H, LAN C L. Fabrication of high-aspect-ratio ceramic microstructures by injection molding with the altered lost mold technique. *Journal of Microelectromechanical Systems*, 2001, 10(1): 62–68.
- [9] CERTON D, PATAT F, LEVASSORT F, et al. Lateral resonances in 1-3 piezoelectric periodic composite: modeling and experimental results. *Journal of the Acoustical Society of America*, 1997, 101(4): 2043–2051.
- [10] BENT A A, HAGOOD N W. Piezoelectric fiber composites with interdigitated electrodes. *Journal of Intelligent Material Systems* and Structures, 1997, 8(11): 903–919.
- [11] WANG S N, LI J F, WATANABE R, et al. Fabrication of lead zirconate titanate microrods for 1-3 piezocomposites using hot isostatic pressing with silicon molds. *Journal of the American Ceramic Society*, 2004, 82(1): 213–215.
- [12] WANG S N, LI J F, LI X H, et al. Processing of PZT microstructures. Sensors and Materials, 1998, 10(6): 375–384.
- [13] DONG Y Z, ZHOU Z Y, LIANG R H, et al. Correlation between

the grain size and phase structure, electrical properties in BiScO₃-PbTiO₃-based piezoelectric ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 2020, **103(9):** 4785–4793.

- [14] PENG J, LUO H S, HE T H, et al. Elastic, dielectric, and piezoelectric characterization of 0.70Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-0.30PbTiO₃ single crystals. *Materials Letters*, 2005, **59(6):** 640–643.
- [15] LIU C G, DJUTH F, ZHOU Q F, et al. Micromachining techniques in developing high-frequency piezoelectric composite ultrasonic array transducers. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2013, 60(12): 2615–2625.
- [16] CANNATA J M, RITTER T A, CHEN W H, et al. Design of efficient, broadband single-element (20–80 MHz) ultrasonic transducers for medical imaging applications. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2003, **50(11)**: 1548–1557.
- [17] FANG R R, ZHOU Z Y, LIANG R H, et al. Effects of CuO addition on the sinterability and electric properties in PbNb₂O₆based ceramics. *Ceramics International*, 2020, 46(15): 23505–23509.
- [18] ZIPPARO M, SHUNG K K, SHROUT T R. Piezoceramics for high-frequency (20 to 100 MHz) single-element imaging transducers. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 1997, 44(5): 1038-1048.
- [19] KRIMHOLTZ R, LEEDOM D A, MATTHAEI G L. New equivalent circuits for elementary piezoelectric transducers. *Electronics Letters*, 1907, 6(13): 398–399.
- [20] ZHOU Q F, XU X C, GOTTLIEB E J, et al. PMN-PT single crystal, high-frequency ultrasonic needle transducers for pulsedwave Doppler application. *IEEE Transactions on Ultrasonics*, *Ferroelectrics, and Frequency Control* 2007, 54(3): 668–675.