

УДК 577.15

А.Д.ВАСИЛЕНКО, канд.техн.наук, В.Г.МЕЛЬНИК, канд.техн.наук, А.И.НОВИК, докт.техн.наук, М.П.РУБАНЧУК  
(Ин-т электродинамики НАН Украины, Киев)

### Стабилизация чувствительности дифференциальных кондуктометрических биосенсорных преобразователей

*Предложены компенсационно-мостовые измерительные цепи с уравниванием по амплитуде выходного сигнала, в которых удается получить прямой отсчет приращения активной проводимости при последовательной схеме замещения импеданса дифференциального сенсора.*

*Запропоновано компенсаційно-мостові вимірні кола із зрівноваженням за амплітудою вихідного сигналу, в яких можна одержати прямий відлік приросту активної провідності при послідовній схемі заміщення імпеданса диференційного сенсора.*

Кондуктометрические методы измерений достаточно широко используются при исследованиях состава растворов в силу простоты аппаратуры и способов ее применения. Высокоточные измерения обычно осуществляются с помощью четырехэлектродных измерительных ячеек, которые обеспечивают инвариантность результатов к электрохимическим процессам на их электродах [6].

Для измерений, где не требуется особо высокая точность, например, при биохимических исследованиях, используются ячейки с датчиком в виде пары двухэлектродных кондуктометрических преобразователей (чувствительных элементов) со встречно-гребенчатой топологией, включенных в мостовую цепь переменного тока для реализации дифференциального метода измерения [1]. В таком устройстве (биосенсоре) производится избирательное воздействие аналита на рабочий чувствительный элемент дифференциальной пары. Вторым чувствительным элементом служит для сравнения и называется референсным. В результате указанного воздействия изменяется выходной сигнал частично уравновешенного моста. Информативной величиной этого сигнала обычно является изменение той составляющей его вектора, которая синфазна с питающим мост напряжением. Такой способ позволяет взаимно скомпенсировать влияние многих дестабилизирующих факторов и получить при измерении более высокую чувствительность.

Выполненные исследования [2,3] показали, что в первом приближении электрическая модель гребенчатого кондуктометрического преобразова-

теля может быть представлена в виде двух последовательно соединенных элементов — резистора и конденсатора. Первый из них определяется, в основном, измеряемой проводимостью раствора, а второй — емкостью двойного слоя на поверхности электродов. Эта емкость является неинформативным параметром, который, однако, существенно влияет на характеристику преобразования измерительной цепи сильно зависит от соотношения активной и реактивной составляющих импеданса кондуктометрических преобразователей, причем последняя связана с материалом датчика, концентрацией раствора, рабочей частотой и другими факторами [2,3,7]. Это не позволяет гарантировать стабильность метрологических характеристик измерительной системы.

В ходе исследований была рассмотрена природа данного явления и предложены способы стабилизации коэффициента преобразования измерительного канала. Суть одного из них состоит в компенсации падений напряжений на емкостных составляющих кондуктометрических преобразователей с помощью регулировки модуля и фазы подаваемых на них напряжений [4]. Однако, при последующих исследованиях выяснилось, что с помощью предложенных в работе [4] цепей коэффициент преобразования, а соответственно и чувствительность стабилизируются не полностью, поскольку остается некоторая, хотя и меньшая, чем ранее, зависимость фазы  $\Delta I$  от  $\operatorname{tg} \varphi$ :

$$\Delta \dot{I}_x = \dot{U}_x \Delta G (1 - j \operatorname{tg} \varphi)^{-1}.$$

Другим решением проблемы стабилизации чувствительности моста может быть переход к использованию в качестве информативного параметра модуля сигнала неравновесия. Определение величины приращения этого параметра возможно как методом прямого преобразования выходного сигнала моста, так и методом экстремального уравнивания последнего. В данной работе предложены компенсационно-мостовые измерительные цепи с уравниванием по амплитуде выходного сигнала.

Одна из возможных функциональных схем такого измерительного устройства показана на рис. 1. Устройство содержит генератор ( $\Gamma$ ) синусоидального измерительного напряжения  $\dot{U}_A$ , квадратурный фазовращатель ( $\Phi В$ ), управляемые делители напряжения с коэффициентами передачи  $K_1$  и  $K_2$ , сумматор напряжений ( $\Sigma$ ), инверторы напряжения (ИНВ1, ИНВ2), дифференциальный кондуктометрический преобразователь  $S_1, S_2$ , схема замещения которого представлена элементами  $C_{S1}, G_{S1}$  (референсная ячейка) и  $C_{S2}, G_{S2}$  (основная ячейка), преобразователь ток-напряжение (ПТН) на операционном усилителе, амплитудный детектор (АД), аналого-цифровой преобразователь (АЦП) и блок уравнивания (БУ). Предполагается, что управляемые делители напряжения  $K_1$  и  $K_2$  содержат элементы памяти, благодаря чему состояние делителя сохраняется и после прекращения подачи на него регулирующего воздействия.

Устройство работает следующим образом. Тестовый сигнал  $U_T$  создает в первой ячейке  $S_1$  кондуктометрического преобразователя ток  $I_{S1}$

$$I_{S1} = \dot{U}_A \left( \frac{1}{G_{S1}} + \frac{1}{j\omega C_{S1}} \right)^{-1}. \quad (1)$$

Ток  $I_{S2}$  во второй ячейке этого преобразователя определяется напряжением  $\dot{U}_\Sigma$ , которое состоит из двух составляющих: напряжения генератора  $\dot{U}_A$  и квадратурного ему напряжения на выходе делителя  $K_1$ . Напряжение  $U_\Sigma$  инвертируется и

регулируется по амплитуде делителем  $K_2$ . Таким образом, к элементу  $S_2$  прикладывается напряжение  $U$ , которое может регулироваться по амплитуде с помощью делителя  $K_2$ , а по величине и знаку квадратурной к  $\dot{U}_A$  составляющей — с помощью делителя  $K_1$ . В среднем положении делителя  $K_1$  квадратурная составляющая равна нулю. Благодаря наличию ИНВ2 ток  $I_{S2}$  имеет фазу, противоположную фазе тока  $I_{S1}$ :

$$I_{S2} = -\dot{U}_A K_2 (1 + jK_1) \left( \frac{1}{G_{S2}} + \frac{1}{j\omega C_{S2}} \right)^{-1}. \quad (2)$$

На выходе измерительной мостовой цепи протекает разностный ток

$$\Delta \dot{I}_S = I_{S1} + I_{S2}.$$

В случае, если дифференциальный датчик идеален и отсутствует дифференциальное воздействие на его элементы ( $C_{S1} = C_{S2}$  и  $G_{S1} = G_{S2}$ ), при  $K_1 = 0$  и  $K_2 = 1$  мостовая цепь оказывается в равновесном состоянии, и разностный ток  $\Delta I_{S1}$  на ее выходе равен нулю. Соответственно равно нулю выходное напряжение ( $U_{\text{вых}}$ ) ПТН, выпрямленное напряжение на выходе АД и цифровой код  $N_{\Delta G}$  на выходе АЦП:

$$I_{S1} = -I_{S2},$$

$$\left( \frac{1}{G_{S1}} + \frac{1}{j\omega C_{S1}} \right)^{-1} = K_2 (1 + jK_1) \left( \frac{1}{G_{S2}} + \frac{1}{j\omega C_{S2}} \right)^{-1}.$$

При  $K_1 = 0$  и  $K_2 = 1$  получаем

$$\frac{1}{G_{S1}} + \frac{1}{j\omega C_{S1}} = \frac{1}{G_{S2}} + \frac{1}{j\omega C_{S2}}.$$

При выполнении измерений изменяется (как правило, увеличивается) активная составляющая проводимости рабочего элемента  $G_{S2}$  преобразователя при сохранении неизменной активной составляющей проводимости  $G_{S1}$  референсного элемента.

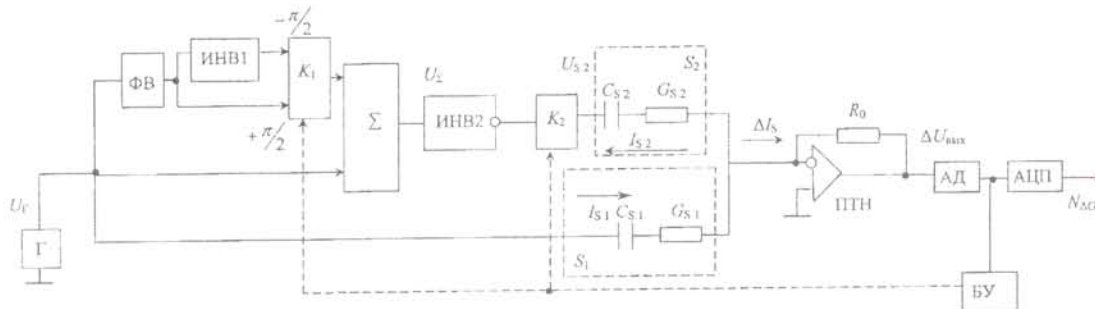


Рис. 1

$$G_{S2}' = G_{S2} + \Delta G_{S2}.$$

Ток  $\dot{I}_{S2}$  при этом приобретает значение  $\dot{I}_{S2}'$

$$\dot{I}_{S2}' = -\dot{U}_{\mathcal{A}} G_{S2} \left( 1 + \frac{\Delta G_{S2}}{G_{S2}} \right) \left( 1 + \frac{\Delta G_{S2} + G_{S2}}{j\omega C_{S2}} \right)^{-1}.$$

При дифференциальных измерениях  $\Delta G_{S2}$  обычно не превышает нескольких процентов от величины  $G_{S2}$ , а емкость  $C_{S2}$  и рабочая частота  $\omega$  таковы, что отношение  $\frac{\Delta G_{S2} + G_{S2}}{\omega C_{S2}}$  не превышает единицы. В этих условиях нелинейность зависимости  $\dot{I}_{S2}$  от  $\Delta G_{S2}$  не превышает (1–2) %, что позволяет ее пренебречь в большинстве случаев. Отсюда

$$\Delta \dot{I}_{S2} \approx \dot{U}_{\mathcal{A}} G_{S2} \left( \frac{\Delta G_{S2}}{G_{S2}} \right) \left( 1 + \frac{G_{S2}}{j\omega C_{S2}} \right)^{-1},$$

а сигнал на выходе ПТН

$$\Delta \dot{U}_{\text{вых}} \approx \dot{U}_{\mathcal{A}} R_0 G_{S2} \left( 1 + \frac{G_{S2}}{j\omega C_{S2}} \right)^{-1} \left( \frac{\Delta G_{S2}}{G_{S2}} \right). \quad (3)$$

Здесь выражение  $R_0 G_{S2} \left( 1 + \frac{G_{S2}}{j\omega C_{S2}} \right)^{-1}$  является масштабным коэффициентом, который приблизительно постоянен для используемого преобразователя в конкретных условиях измерений.

Из выражения (3) следует, что отношение приращения амплитуды сигнала на выходе мостовой измерительной цепи к амплитуде тестового сигнала соответствует относительному приращению электропроводности рабочего элемента преобразователя. Таким образом, если мостовая цепь в исходном состоянии уравновешена, то после воздействия на дифференциальный преобразователь можно определить величину изменения информативного параметра — электропроводности  $G_{S2}$  по величине амплитуды возникшего сигнала неравновесия. Из выражения (3) также видно, что даже при весьма значительном изменении соотношения активной и реактивной составляющих импеданса кондуктометрического преобразователя приращение модуля выходного сигнала моста изменяется в небольших пределах. Так, при изменении тангенса фазового угла в 2 раза (от 0,7 до 1,4), что иногда может иметь место на практике, чувствительность прибора изменится только на 40 %.

Однако на практике очень сложно добиться идеального совпадения параметров  $C_S$  и  $G_S$  рабочего и референсного элементов дифференциального преобразователя. Возникающий вследствие этого

начальный разбаланс моста может существенно превышать информативное изменение его выходного сигнала. Поэтому требуется предварительное уравновешивание мостовой измерительной цепи перед началом измерения. Оно может осуществляться с помощью блока уравновешивания БУ и делителей напряжения  $K_1, K_2$  (рис. 1) методом экстремального регулирования с использованием информации об изменении амплитуды сигнала неравновесия моста [5]. Поочередным регулированием делителей  $K_1$  и  $K_2$  (каждый раз до достижения минимального напряжения на выходе детектора АД) система за несколько итераций приходит к равновесию, когда  $\Delta I_S$  и  $U_{\text{вых}}$  практически равны нулю.

Отметим, что равновесное состояние моста может быть достигнуто при любых соотношениях параметров дифференциальных элементов кондуктометрического преобразователя благодаря тому, что коэффициент передачи ветви фазовращателя и первого делителя напряжения может принимать как положительные, так и отрицательные значения ( $\pm jK_1$ ), а коэффициент передачи второго делителя напряжения может быть как меньше, так и больше единицы.

По окончании уравновешивания (достижении  $\dot{U}_{\text{вых}} = 0$ ) затормаживают блок уравновешивания БУ, производят биохимическое воздействие на ячейку  $S_2$ , а затем по модулю выходного напряжения  $U_{\text{вых}}$  или коду  $N_{\Delta G}$  отсчитывают величину  $\Delta G$ .

На рис. 2 показана функциональная схема другого варианта построения измерителя разности электропроводности. Она позволяет уравновесить мост в исходном состоянии таким же образом, как это делалось в ранее рассмотренном устройстве с регулировкой фазы тестового сигнала [4], а затем, после произведенного биохимического воздействия на преобразователь, произвести доуравновешивание моста, чем компенсировать изменение тока за счет изменения  $G_{S2}$ . Для этого в состав устройства введен еще один управляемый делитель напряжения  $K_3$  и второй сумматор  $\Sigma_2$ , которые позволяют в небольших пределах регулировать напряжение, подаваемое на референсный элемент дифференциального преобразователя, по составляющей, синфазной с напряжением генератора.

В исходном состоянии с помощью делителя напряжения  $K_1$  производится уравновешивание реактивной составляющей выходного сигнала моста. Для определения момента равновесия в качестве выпрямителя используется синхронный детектор СД, на который подается опорный сигнал  $U_0$ , квадратурный к  $U_1$ . Затем регулировкой  $K_2$  мост уравновешивается по активной составляющей при подаче на синхронный детектор синфазного с  $U_1$  опорного сигнала. При необходимости (если параметры  $C_S$  и  $G_S$  элементов преобразователя существ-

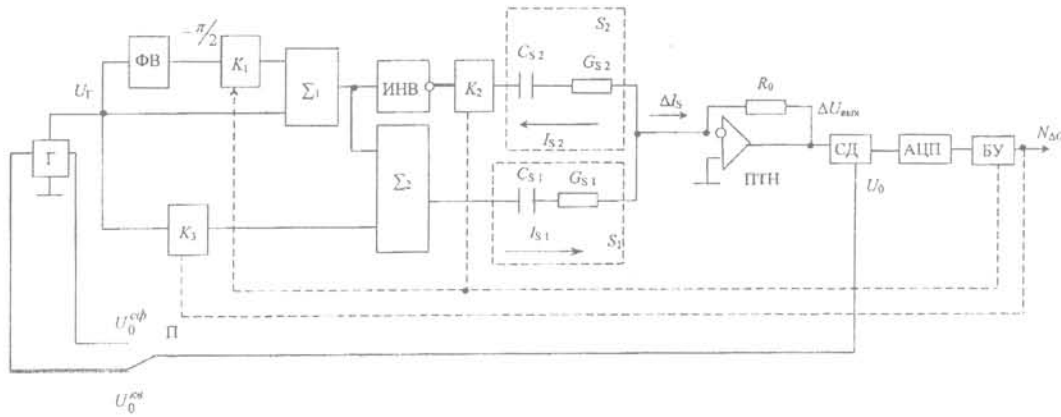


Рис. 2

венно отличаются) возможно более точное уравновешивание путем регулировки  $K_3$ .

После воздействия на рабочий элемент преобразователя проводимость  $G_{S2}$  увеличивается на  $\Delta G_{S2}$ , что приводит к увеличению тока  $\Delta I_{S2}$  на величину  $\Delta I_{S2} \approx U_A \Delta G_{S2}$ . Вызванное этим увеличение выходного сигнала моста  $\Delta I_S$  (синфазное с  $\dot{U}_A$ ) может быть скомпенсировано изменением тока  $I_{S1}$  в референсном элементе преобразователя за счет изменения приложенного к нему напряжения по синфазной с  $\dot{U}_A$  составляющей. Такая составляющая напряжения формируется с помощью делителя напряжения  $K_3$ , управляемого через блок управления БУ, и прикладывается к преобразователю через сумматор  $\Sigma_2$ . Таким образом, относительное изменение кода управления  $N_{\Delta G}$  делителем  $K_3$  приблизительно соответствует величине относительного изменения электропроводности  $G_{S2}$ .

Описанные схемы (рис. 1 и рис. 2) позволяют обеспечить стабилизацию чувствительности "в малом", т.е. при бесконечно малых приращениях измеряемой проводимости ячейки. Рассмотрим этот вопрос подробнее. На рис. 3 показана векторная диаграмма напряжений на элементах ячейки. Первоначально к последовательному соединению элементов  $G_x$  и  $C_x$  (имеется в виду рабочая ячейка) приложено напряжение генератора  $\dot{U}_A$  (отрезок  $AB$ ). При этом векторы напряжения  $\dot{U}_G$  и  $\dot{U}_C$  (на активной и реактивной компонентах адмитанса ячейки) представляют собой катеты прямоугольного треугольника  $ACB$ , гипотенузой которого является отрезок  $AB$ . После регулирования делителя  $K_1$  к ячейке прикладывается напряжение  $\dot{U}_A + \dot{U}_K$  (отрезок  $AD$ ), причем вектор  $\dot{U}_G$  поворачивается до положения  $\dot{U}_{G2}$  и становится совпадающим с напряжением  $\dot{U}_A$ , т.е. теперь к исследуемой проводимости ячейки приложено напряжение, совпадающее по модулю и по фазе с напряжением генератора. Поэтому ток через ячейку определяется как  $U_A / G_x$ , и по его величине можно судить об измеряемом параметре. Однако как только под действием

аналита значение  $G_x$  изменится, равенство  $U_{G2} = U_A$  нарушится, поскольку произойдет перераспределение напряжений на элементах ячейки. Они по-прежнему остаются в квадратуре по отношению друг к другу, но точка соединения векторов  $\dot{U}_G$  и  $\dot{U}_C$  из положения  $B$  переместится по полуокружности  $AFD$ , имеющей диаметр  $AD$ , в новое положение, например,  $B_1$ . Новый вектор напряжения на проводимости  $G_x$   $\dot{U}_{G3}$  (показан на рисунке штриховой линией) уже не совпадает с  $\dot{U}_A$  ни по модулю, ни по фазе, поэтому ток через ячейку не может считаться зависящим только от  $G_x$ , появляется погрешность измерения (это отражено, в частности, в формуле (3)).

Для исключения описанного нежелательного явления необходимо при изменении проводимости  $G_x$  в процессе ее измерения постоянно регулировать напряжение  $U_K$  так, чтобы всегда вектор  $\dot{U}_{G2}$  (и, соответственно, вектор тока  $\dot{I}_S$ ) был коллинеарен вектору  $\dot{U}_A$ , при этом будет иметь место стабилизация чувствительности "в большом".

На рис. 4 показана схема измерительной цепи, в которой реализуется вышеописанная возможность. Она содержит те же элементы, что и схема на рис. 2, добавлены только три ключа  $K_{11} - K_{13}$  и вто-

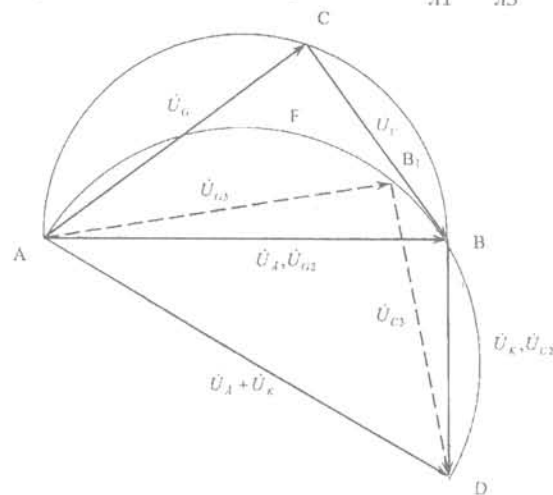


Рис. 3

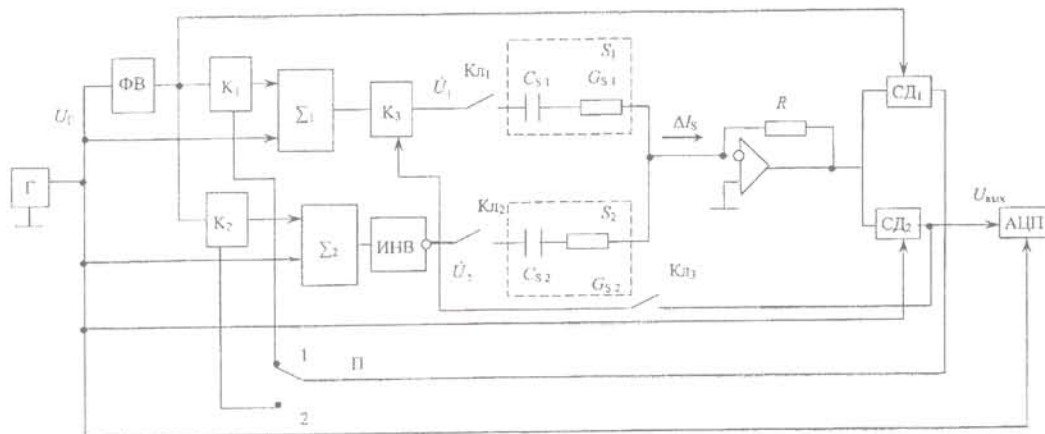


Рис. 4

рой синхронный квадратурный детектор СД<sub>2</sub>. Измерение проводится в четыре этапа — три подготовительных и четвертый — собственно формирование сигнала, пропорционального приращению проводимости рабочей ячейки. В таблице приведено состояние ключей  $K_{д1} - K_{д3}$ , переключателя П, а также указан регулируемый параметр и конечный результат регулирования на данном этапе. Состояния ключей условно обозначены: \* — ключ замкнут, 0 — ключ разомкнут. На первом этапе регулированием  $K_1$  поворачивается вектор напряжения на референсной ячейке  $S_1$  до коллинеарности тока через эту ячейку с напряжением  $U_{\mathcal{L}}$  (индикация по нулевому напряжению на выходе СД<sub>1</sub>). На втором этапе — та же операция с напряжением на ячейке  $S_2$  путем регулирования  $K_2$ . На третьем этапе — выравнивание по модулю коллинеарных противофазных векторов токов через первую и вторую ячейки регулированием  $K_3$ , в результате чего разность токов  $\Delta I_S$  становится нулевой. Наконец, на последнем, четвертом, этапе воздействуют на рабочую ячейку анализом, при этом система, регулируя  $K_2$ , непрерывно отслеживает, чтобы возникающий вектор тока  $\Delta I_S$  был всегда коллинеарен вектору напряжения генератора (критерием служит равенство нулю сигнала на выходе СД<sub>1</sub>). С выхода СД<sub>2</sub> при этом снимается напряжение  $U_{\text{вых}}$ , пропорциональное приращению  $\Delta G_{S2}$  в результате биохимического воздействия на ячейку.

Этап	Кл <sub>1</sub>	Кл <sub>2</sub>	Кл <sub>3</sub>	Положен. П	Регул. делит.	В конце этапа
1	*	0	0	1	$K_1$	Поворот $\dot{U}_1$
2	0	*	0	2	$K_2$	Поворот $\dot{U}_2$
3	*	*	*	2	$K_3$	Выравнивание $\dot{I}_1 = \dot{I}_2$
4	*	*	0	2	$K_2$	Отсчет $\dot{U}_{\text{вых}} = k\Delta G_2$

Рассмотренные в данной работе измеритель-

ные схемы позволяют уменьшить влияние неинформативных параметров дифференциального кондуктометрического преобразователя на чувствительность измерительной цепи и значительно повысить точность измерения. Последняя измерительная цепь (рис. 4) дает возможность полностью исключить влияние реактивной составляющей иммитанса биохимической ячейки на результат измерения приращений его активной составляющей.

Представленные в данной статье результаты исследований получены в рамках выполнения научно-технической программы НАН Украины "Сенсорные системы для медико-экологических и промышленно-технических потребностей".

1. Дзядевич С.В., Солдаткин О.П. Наукові та технологічні засади створення мініатюрних електрохімічних біосенсорів. — К.: Наукова думка, 2006. — 256 с.

2. Мельник В.Г., Василенко А.Д., Медведенко М.П., Михаль А.А., Солдаткин А.А. Исследование информативных параметров дифференциальных кондуктометрических биосенсоров // Технічна електродинаміка. Тем. вип. "Проблеми сучасної електротехніки". — 2006 — Ч. 3. — С. 119—124.

3. Мельник В.Г., Василенко А.Д., Медведенко М.П., Михаль А.А., Солдаткин А.А. Об оптимизации конструкции и режима работы кондуктометрических биосенсоров / Тези доп. 2-ї Міжн. наук.-техн. конф. "Сенсорна електроніка та мікро-системні технології" (СЕМСТ-2). — Одеса, нац. ун-т ім. І.І. Мечнікова — 2006. — С. 253.

4. Мельник В.Г., Рубанчук М.П., Михаль А.А. Измерительные цепи для кондуктометрических преобразователей с дифференциальными двухэлектродными датчиками // Техн. електродинаміка. — 2008. — №2. — С. 119—124.

5. Новик А.И. Системы автоматического уравнивания цифровых экстремальных мостов переменного тока. — К.: Наукова думка, 1983. — 224 с.

6. Сурду М.Н. Теоретические основы построения вариационных квадратурных мостов переменного тока // Измерительная техника. — 2006. — № 10. — С. 58—63.

7. Langereis G.R. An integrated sensor system for monitoring washing processes // ISBN 90-365-1272-7, 1999.

Надійшла 07.08.2008