

# تشخیص استون در غلظت‌های کم با حسگر مجهز شده به سامانه پیش‌تغلیظ‌گر زئولیت A

سیمین روح‌افزایی<sup>۱</sup> سعیده رهبرپور<sup>۲</sup> محمد قربعلی<sup>۳</sup> نوید قدسی<sup>۴</sup>

۱- دانش‌آموخته کارشناسی‌ارشد- دانشکده فنی و مهندسی- دانشگاه شاهد- تهران- ایران

[s.rouhafzaee@shahed.ac.ir](mailto:s.rouhafzaee@shahed.ac.ir)

۲- استادیار- دانشکده فنی و مهندسی- دانشگاه شاهد- تهران- ایران

[s.rahbarpour@shahed.ac.ir](mailto:s.rahbarpour@shahed.ac.ir)

۳- دانش‌آموخته کارشناسی‌ارشد- دانشکده فنی و مهندسی- دانشگاه شاهد- تهران- ایران

[mohamad.ghorbali@shahed.ac.ir](mailto:mohamad.ghorbali@shahed.ac.ir)

۴- استادیار- دانشکده فنی و مهندسی- دانشگاه گیلان- گیلان- ایران

[navidghodsi@yahoo.com](mailto:navidghodsi@yahoo.com)

**چکیده:** آشکارسازی استون با استفاده از حسگر گاز در غلظت‌های پایین به علت کاربرد در شناسایی بیماری دیابت از تنفس بسیار حائز اهمیت است، درحالی‌که معمولاً حسگرهای گاز رایج فاقد چنین توانایی هستند. اندازه‌گیری استون موجود در بازدم انسان یک روش معتبر در تشخیص بیماری دیابت است، اما به علت مقدار کم استون در تنفس (کمتر از ۱۰ ppm) اندازه‌گیری آن با استفاده از حسگرهای گاز تجاری دارای چالش‌های فراوانی است. در پژوهش حاضر، جذب استون توسط زئولیت A نشان داده شد و سپس با استفاده از آن عملکرد حسگر گاز TGS2602 در تشخیص گاز استون بهبود داده شد. ابتدا پاسخ حسگر به مقادیر کمتر از ۱۰ ppm استون بررسی شد. سپس هوای آلوده به استون از بستر زئولیتی عبور داده شد تا استون موجود در آن در سطح زئولیت جذب شود. بلافاصله بعد از مرحله جذب، گرمایش زئولیت تا دمای ۴۵۰ درجه سانتی‌گراد انجام شد تا استون‌های جذب شده به صورت یک‌جا رهاسازی شوند و باعث ایجاد غلظت لحظه‌ای بالاتری در محفظه حسگر نسبت به غلظت اولیه گاز شوند. به دلیل افزایش غلظت در زمان رهاسازی، پاسخ حسگر بهبود یافت. با این روش، غلظت استون در محفظه حسگر نسبت به هوای مورد آزمایش بیش از ۵۰ برابر افزایش داشت که باعث افزایش ۷ برابری پاسخ حسگر گردید. جهت بررسی کارایی سامانه ساخته شده، تأثیر عواملی از جمله جرم زئولیت استفاده شده، سرعت جابه‌جایی هوا و دمای رهاسازی بررسی شد. مشاهده شد که استفاده از حسگر مجهز شده به پیش‌تغلیظ‌گر زئولیت A به عنوان یک روش آسان، کم‌هزینه و قابل اطمینان، حد آستانه تشخیص حسگر تجاری را افزایش می‌دهد.

**واژه‌های کلیدی:** پیش‌تغلیظ‌گر، استون، زئولیت A، غلظت کم استون، دیابت

نوع مقاله: پژوهشی

DOI: 10.29252/jiaeee.18.4.139

تاریخ ارسال مقاله: ۱۳۹۹/۲/۱۵

تاریخ پذیرش مشروط مقاله: ۱۳۹۹/۰۷/۰۲

تاریخ پذیرش مقاله: ۱۳۹۹/۸/۱۱

نام نویسنده‌ی مسئول: دکتر سعیده رهبرپور

نشانی نویسنده‌ی مسئول: ایران- تهران- اتوبان خلیج فارس- دانشگاه شاهد- دانشکده‌ی فنی و مهندسی

## ۱- مقدمه

امروزه مشخص‌شده بیش از ۳۵۰۰ جز شیمیایی در بازدم انسان وجود دارد که غلظت بیشتر آن‌ها بسیار کم است (از یک مولکول در تریلیون (ppt) تا یک مولکول در میلیون (ppm) مولکول هوا) [۱]. بیماری‌ها با تأثیر بر فرآیندهای متابولیکی بدن، مقادیر گازهای مختلف موجود در هوای ریه‌ها را تغییر می‌دهند [۲]. چوستونگ و همکاران و گرووس و همکاران برای تشخیص‌های طبی از شیوه پیش‌تغلیظ استفاده کردند. آن‌ها از طریق آنالیز هوای بازدم افراد بیمار با به-کارگیری سیستم پیش‌تغلیظ دریافتند برخی مولکول‌های گاز در بازدم، وضعیت سلامتی بیماران را توصیف می‌کند [۳]. برای مثال میانگین غلظت استون در بازدم یک انسان سالم ۰/۳ تا ۰/۹ ppm است که این میزان در دیابتی‌ها به بیش از ۱/۸ ppm می‌رسد. در حال حاضر استون به‌عنوان یک نشانگر تنفسی مطمئن و مناسب در تشخیص دیابت پذیرفته‌شده است [۴] که به علت مقدار اندک آن به‌راحتی توسط حسگرهای گاز تجاری قابل‌تشخیص نیست و تشخیص آن با استفاده از شیوه‌هایی نظیر کروماتوگرافی گاز به همراه طیف‌سنجی جرمی، طیف‌سنجی جرمی همراه با واکنش انتقال پروتون، طیف‌سنجی جرمی همراه با لوله جریان یونی انتخابی و شیوه‌های گران قیمت دیگر انجام می‌شود که تمامی این روش‌ها هنوز به علت هزینه و پیچیدگی زیاد کاربرد عمومی و تجاری پیدا نکرده‌اند [۵، ۶].

علی‌رغم رشد روزافزون تحقیقات در زمینه شناخت بیماری‌ها از تنفس و در نظر داشتن این واقعیت که مقادیر بسیاری از گازهای تنفسی کمتر از چند ppm است [۶] هنوز حسگرهای تجاری مناسب برای تشخیص این گازها وجود ندارد [۷]. حسگرهای مقاومتی گاز تراکم ذرات را به وسیله تغییر مقاومت (هدایت) الکتریکی ثبت می‌کنند [۸] و پاسخ حسگر تحت عوامل محیطی نظیر رطوبت تغییر می‌کند [۹]. حسگرهای گاز تجاری در دسترس مانند TGS822 و TGS823 محدوده غلظت ۵۰-۵۰۰ ppm را پوشش می‌دهند و در مقادیر زیر ۱۰ ppm پاسخ مناسبی ندارند [۱۰، ۱۱] درحالی‌که وجود حسگر گاز با قابلیت تشخیص مقادیر اندک گاز می‌تواند کمک فراوانی به ساخت سامانه‌های ارزان‌قیمت و غیرتهاجمی تشخیص بیماری از تنفس کند. اهمیت موضوع زمانی بیشتر آشکار می‌شود که شرایط سخت تکرار تست‌های تشخیصی در بیماران نیز در نظر گرفته شود. برای مثال بیماران مبتلا به دیابت نوع ۱ باید در روز حداقل ۶ بار قند خون خود را کنترل کنند که بسیاری از این بیماران کودکان زیر ۲ سال هستند و تحمل چندین بار نمونه‌گیری سوزنی را ندارند [۵]. از این‌رو تحقیقات بر روی حسگرهای فوق حساس افزایش پیدا کرده است [۱۲] هرچند که حسگرهای فوق حساس گزارش‌شده در مقالات نیز هنوز تا تجاری شدن راه زیادی دارند [۶]. در جدول ۱ مقایسه‌ای بین روش‌های مختلف اندازه‌گیری قند خون ارائه شده است.

بعضی از مواد قادرند مولکول‌های گاز را در سطح خود جذب کنند. مولکول‌های جذب شده را می‌توان در فرآیندهایی نظیر گرمادهی [۹] از سطح جدا نمود. از این مواد می‌توان در تغلیظ گاز با هدف بهبود سیگنال آشکارسازهای گاز نظیر سامانه‌های کروماتوگرافی گاز و حسگرهای گاز استفاده نمود. یافتن جاذب مناسب برای گاز هدف و همچنین امکان جمع‌آوری تعداد کافی از مولکول‌های گاز هدف توسط جاذب مهم‌ترین چالش در تولید سامانه‌های تغلیظ گاز است؛ منظور از مقدار کافی آزاد کردن گاز بیش‌تر از آستانه آشکارسازی حسگر گاز است به‌نحوی‌که پس از آزادسازی و انتقال به سطح حسگر گاز، سیگنال الکتریکی قابل قرائت در خروجی حسگر گاز ایجاد شود.

تحقیقات متعددی بر روی طراحی و ساخت سامانه‌های پیش-تغلیظ گاز انجام‌شده است. یک سامانه پیش‌تغلیظ‌گر شامل سه جز اصلی محفظه و گرم‌کن جاذب، جاذب و آشکار ساز است که طراحی دقیق هر کدام حایز اهمیت بسیار است. غالباً از کروماتوگرافی گاز [۱۳-۱۶] یا حسگر گاز [۳، ۱۱] بعنوان آشکار ساز برای تشخیص گاز پیش‌تغلیظ شده استفاده می‌شود. استفاده از جاذب‌ها در کنار حسگر گاز نسبت به استفاده از پیش‌تغلیظ‌گر در کنار دستگاه کروماتوگرافی گاز، قیمت و پیچیدگی سامانه تشخیص گازی را کاهش می‌دهد. در خصوص سامانه‌های پیش‌تغلیظ‌گر استون استفاده از جاذب‌هایی نظیر کربن فعال، سیلیکاژل [۱۳]، نانو پودر کربن [۳]، غربال‌های مولکولی کربنی [۱۱]، کربوپک X [۱۶]، Tenax TA [۱۵] و فیلم طلا [۱۴] گزارش شده‌است. از تکنولوژی MEMS نیز برای ساخت پیش‌تغلیظ‌گر در این سامانه‌ها استفاده شده است. استفاده از این تکنولوژی ابعاد پیش‌تغلیظ‌گر و توان مورد نیاز برای انجام فرآیند پیش‌تغلیظ را کاهش می‌دهد ولی گران‌قیمت می‌باشد. در جدول ۲ کارهای انجام شده در زمینه پیش‌تغلیظ استون ارائه شده است.

برخلاف جاذب‌های گران‌قیمتی نظیر غربال‌های مولکولی کربن، ژئولیت‌ها علی‌رغم داشتن قابلیت جذب مواد مختلفی مانند نفت، انواع گازها و فلزات سنگین بسیار ارزان قیمت و در دسترس هستند و روش سنتز آسانی نیز دارند. اگرچه به ندرت از خانواده ژئولیت‌ها در سامانه‌های پیش‌تغلیظ‌گر استفاده شده است اما به دفعات کاربردهای مختلفی نظیر فیلتراسیون و حذف آلاینده‌های آبی استفاده شده است. ژئولیت‌ها از طریق به دام انداختن مولکول‌ها در حفرات ساختاری خود مواد را جذب می‌کنند. بیش از ۲۰۰ نوع زیولیت در طبیعت وجود دارد که ابعاد حفره در آن‌ها بین ۲-۱۰ آنگستروم متغیر است و با تغییر ساختار مولکولی می‌توان به راحتی ابعاد حفره‌های آن‌ها را کنترل کرد. با توجه به اینکه مواد زیادی ابعاد مولکولی در این محدوده دارند لذا ژئولیت‌ها می‌توانند برای جذب انتخابی ترکیبات مختلف استفاده شوند [۱۷]. از ویژگی ژئولیت‌ها به امکان تبادل کاتیون‌ها در شبکه ژئولیت‌ها می‌توان اشاره کرد. این کاتیون‌ها مکان‌های جذب ویژه برای جذب ترکیبات قطبی به

شد. به این منظور مقدار مشخصی از مایع استون در یک محفظه تمیز از جنس پلی متیل متاکریلات تزریق شد.

جدول (۱): مقایسه روش‌های تشخیص دیابت

ردیف	روش	نمونه گیری	نوع درمان	هزینه		مرجع
				گران	ارزان	
۱	دستگاه سنجش گلوکز خون	خون	تهاجمی		✓	[۵]
۲	کروماتوگرافی گاز-طیف سنجی جرمی	تنفس	غیر تهاجمی	✓		[۶]
۳	طیف سنجی جرمی همراه با واکنش انتقال پروتون	تنفس	غیر تهاجمی	✓		[۶]
۴	طیف سنجی جرمی همراه با لوله جریان یونی انتخابی	تنفس	غیر تهاجمی	✓		[۶]
۵	طیف سنجی لیزری	تنفس	غیر تهاجمی	✓		[۶]
۶	حسگر گاز با پیش تغلیظ گاز	تنفس	غیر تهاجمی		✓	[۱۱]

جدول (۲): مقایسه روش‌های پیش تغلیظ گاز استون

ساختار پیش تغلیظگر	جاذب	غلظت گاز (ppm)	آشکارساز	روش (تولید، جذب، ...)	پیش تغلیظ	مرجع
لوله فولاد ضد زنگ	۸ مدل کربوکسن	۰.۸ ۸ ۸۰	آرایه حسگر گاز		۶۰	[۹]
میکرو کانال از جنس کوارتز	۸ مدل کربوکسن	۰.۸ ۸ ۸۰	آرایه حسگر گاز		۶۰	[۹]
میکروکانال با تکنولوژی MEMS	۸ مدل کربوکسن	۰.۸ ۸ ۸۰	آرایه حسگر گاز		۶۰	[۹]
میکروکانال	X کربوپک	۰.۱۵	کروماتوگرافی گاز		۲۵	[۱۴]
میکروکانال	دو مدل کربوکسن	۳۰ sccm (flow)	کروماتوگرافی گاز		۳۰	[۶]
میکروکانال سیلیکونی	نانو پودر کربنی	۰.۲۵	کروماتوگرافی گاز		۳۰	[۳]
استیل ضد زنگ	کربن فعال و سیلیکا ژل	-	کروماتوگرافی گاز		۹۰	[۱۱]

شمار می‌روند. زیرا برهم کنش الکترواستاتیک قوی بین میدان الکترواستاتیک محلی و گشتاور دوقطبی ثابت ترکیبات وجود دارد. اخیراً استفاده از زئولیت NaY به‌عنوان جاذب اکسید نیتروژن گزارش شده و نشان داده‌شده است که می‌توان از قابلیت‌های جذب این ماده در ساخت پیش‌تغلیظگر اکسید نیتروژن به همراه حسگر گاز استفاده نمود [۱۸]. از آن‌جا که در کاربردهایی نظیر اندازه‌گیری قند خون وجود یک سیستم تشخیص گاز ارزان‌قیمت و کارآمد بسیار ضروری به نظر می‌رسد لازم است استفاده از جاذب‌های ارزان قیمت مانند زئولیت مد نظر قرار گیرد.

در کار حاضر ضمن بررسی پاسخ حسگر تجاری TGS2602 به غلظت‌های کمتر از ۱۰ ppm استون مشخص شد که پاسخ حسگر به این محدوده از گاز از ۱.۰۱ تا ۱.۳ تغییر می‌کند که اعداد بسیار کوچکی بوده و اندازه‌گیری دقیق آن نیاز به سامانه‌های اندازه‌گیری بسیار دقیق دارد. همچنین حسگر فوق در محدوده کمتر از ۱ ppm که برای اندازه‌گیری قند خون از تنفس بسیار حایز اهمیت است کارایی ندارد و این محدوده زیر آستانه حسگری آن می‌باشد. از این رو به منظور بهبود پاسخ حسگر در محدوده مورد بررسی و تغییر حد تشخیص حسگر، یک سامانه پیش‌تغلیظگر با استفاده از ساختار ساده و ارزان قیمت طراحی و ساخته شد که در آن از زئولیت A به‌عنوان جاذب استفاده شد به نحوی که سامانه طراحی شده قابلیت تولید سیگنال قابل قرائت توسط حسگر گاز را داشته باشد. در این سامانه مولکول‌های گاز در جاذب به دام می‌افتند و بعد از مدتی با رهاسازی آن‌ها، حجم زیادی از گاز (در حدود ۵۰ برابر مقدار اولیه) به سمت محفظه حسگر حرکت می‌کند. از این رو پاسخ حسگر در مواجهه با گاز تغلیظ شده (بیش از ۸ برابر) بهبود می‌یابد. همچنین عوامل مؤثر بر رفتار سامانه ساخته‌شده نظیر سرعت جریان هوا در جذب و رهاسازی، زمان جذب، جرم جاذب استفاده شده، دمای رهاسازی و تکرارپذیری سامانه بررسی شد و نشان داده شد با تغییر این عوامل می‌توان رفتار سامانه را ارتقا داد. افزایش دمای رهاسازی، افزایش سرعت جریان هوا در مرحله جذب، افزایش زمان جذب و افزایش جرم جاذب همگی باعث افزایش پاسخ حسگر یا عبارتی افزایش ضریب پیش‌تغلیظگر می‌شوند درحالی‌که افزایش سرعت جریان هوا در زمان رهاسازی باعث پاسخ حسگر می‌شود. همچنین در شرایط مشابه رفتار جاذب‌های دیگری نظیر سیلیکا ژل و کربن فعال بررسی شد که مشخص شد سیلیکا ژل ۱۶٪ و کربن فعال ۲٪ زئولیت A کارایی دارند و عملاً برای پیش‌تغلیظ استون مناسب نیستند.

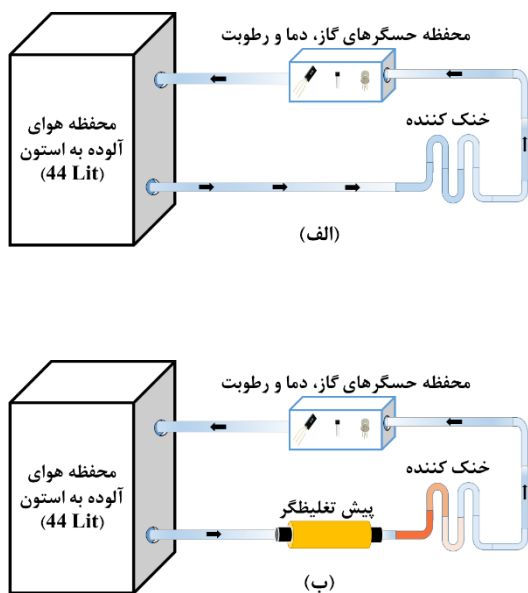
## ۲- کار آزمایشگاهی

هوای آلوده به استون با غلظت‌های مختلف از ۱ تا ۱۰ ppm در محفظه تولید شد. از آنجا که حسگر استفاده شده در غلظت‌های کمتر از ۱ ppm پاسخ نداشت محدوده ۱ تا ۱۰ ppm برای بررسی‌ها انتخاب

است. در کار حاضر ضریب تغلیظ به صورت نسبت غلظت بعد (C2) و قبل (C1) از پیش تغلیظ به صورت رابطه زیر تعریف می‌شود:

$$CF = \frac{C_2}{C_1} \quad (3)$$

از آن‌جا که ضریب تغلیظ به نوع جاذب و ویژگی‌های جاذب (مساحت سطح، اندازه دانه و جرم)، زمان جذب، جریان گاز و دمای رها سازی وابسته است [۲۰]، در آزمایش‌ها تاثیر مقدار جرم جاذب نیز در عملکرد سامانه مورد توجه و بررسی قرار گرفته است.



شکل (۱): طرحواره سامانه طراحی شده برای بررسی و ثبت پاسخ حسگر بدون پیش تغلیظگر (الف) و با پیش تغلیظگر (ب)

## ۳- نتایج و بحث

پاسخ حسگر تجاری به جریان هوای آلوده به ۱۰ ppm گاز استون در حالت بدون جاذب بررسی شد. نتایج نشان داد که هدایت حسگر در هوای آلوده نسبت به هوای تمیز ۱/۳ برابر افزایش می‌یابد که این تغییر چشمگیر نخواهد بود و حتی ممکن است با تغییرات محیطی نیز حادث شود. اگرچه در آزمایش‌ها، شرایط محیطی کاملاً کنترل شده بودند و این تغییرات تماماً ناشی از تأثیر ۱۰ ppm گاز استون بر روی حسگر گاز تجاری TGS2602 بوده است. با قرار دادن محفظه جاذب در مسیر جریان هوا (شکل ۱-ب) و انجام فرایند جذب (به مدت ۲۰ دقیقه) و فرایند رها سازی (به مدت ۵ دقیقه با دمای رها سازی ۴۵۰) پاسخ حسگر به صورت تابع شبه ضربه تغییر کرد که مقدار بیشینه آن نسبت به هدایت اولیه حسگر در هوای پاک حدود ۸ برابر افزایش داشت. پاسخ حسگر گاز به ازای رها سازی مولکول‌های استون در دماهای مختلف با یکدیگر مقایسه شده است (شکل ۲-الف). همان‌طور که از شکل مشخص است دمای رها سازی بر ضریب پیش تغلیظ تأثیر داشته و افزایش آن باعث بهبود ضریب پیش تغلیظ

به علت فرار بودن استون، مایع تزریق شده به سرعت تبخیر شده و پس از یکنواخت شدن در محفظه به کمک یک فن، غلظت مورد نظر را ایجاد می‌کند. رابطه غلظت و مقدار تزریق شده به صورت زیر است:

$$C = \frac{0.082 \rho T V_s}{MV} * 1000 \quad (1)$$

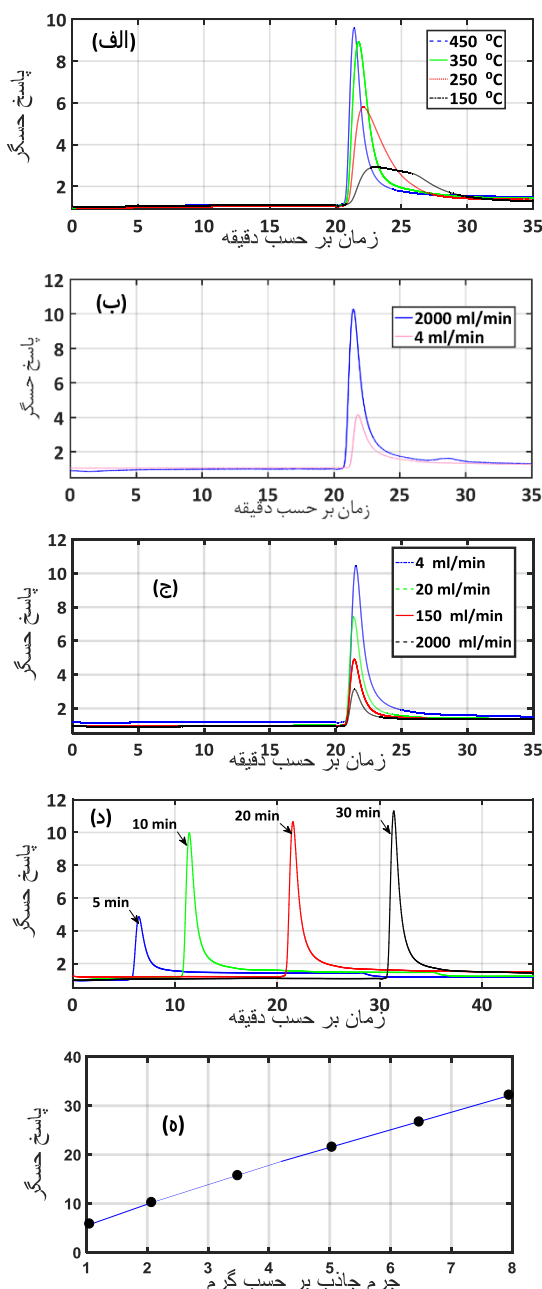
که در آن C غلظت گاز استون (ppm)،  $\rho$  چگالی مایع استون (g/ml)، T دمای تست (K)،  $V_s$  حجم مایع استون (μl)، M وزن مولکولی استون (g/mol) و V حجم محفظه (L) است. مقادیر M و  $\rho$  به ترتیب ۵۸ g/mol و ۰/۷۸۸ g/ml هستند [۱۹].

پس از تثبیت گاز در محفظه گاز، با استفاده از یک پمپ مینیاتوری، هوای آلوده به گاز هدف برای ثبت پاسخ، به سطح حسگر TGS2602 رسانده می‌شود و سپس در یک مسیر بسته مجدداً به محفظه گاز برمی‌گردد. برای جلوگیری از رقیق شدن هوای آلوده در هنگام مواجهه با سطح حسگر، حسگر نیز در یک محفظه کوچک‌تر به نام محفظه حسگر قرار داده شده است (شکل ۱-الف). مقدار جریان گاز در ۲۰۰۰ ml/min تنظیم شد. در آزمایش‌هایی که از جاذب برای افزایش غلظت گاز در محفظه حسگر نسبت به محفظه گاز استفاده شد یک محفظه کوچک دیگر (با ابعاد ۱۸ میلی‌لیتر) در مسیر جریان گاز و مابین محفظه گاز و محفظه حسگر قرار داده شد (شکل ۱-ب). محفظه‌ای که محفظه پیش تغلیظ نام دارد از جاذب زئولیت A پر شد تا در زمان عبور گاز آلوده از این محفظه، جاذب مولکول‌های گاز استون را در سطح خود جذب کند. چرخش هوای آلوده از محفظه گاز به محفظه جاذب و سپس به محفظه حسگر و مجدداً به محفظه گاز ادامه بیست دقیقه انجام شد (در مورد نحوه انتخاب زمان ۲۰ دقیقه در بخش ۳ توضیح داده خواهد شد). پس از اتمام زمان جذب (۲۰ دقیقه)، با اعمال ولتاژ به گرم‌کن قسمت میانی محفظه جاذب، جاذب با نرخ گرمایش ۷۵۰ °C/min تا دمای ۴۵۰ °C گرم شد. گرم شدن سریع جاذب تا این دما باعث می‌شود که مولکول‌های جذب شده روی سطح جاذب به یکباره رها شوند. انتقال مولکول‌های آزاد شده توسط جریان هوا به محفظه حسگر باعث افزایش لحظه‌ای غلظت گاز در محفظه حسگر و افزایش شدید پاسخ حسگر شد. در پژوهش [۲۰] نشان داده شد که کاهش جریان گاز در این مرحله باعث افزایش پاسخ حسگر می‌شود. مقدار جریان هوا از ۲۰۰۰ ml/min در مرحله جذب به ۴ ml/min در مرحله رها سازی کاهش داده شد. اگر مقدار جریان گاز در مقدار اولیه خود باقی می‌ماند گاز رها سازی شده به سرعت وارد محفظه حسگر می‌شد و قبل از اینکه حسگر فرصت پاسخ به آن را پیدا کند از محفظه حسگر خارج می‌شد.

پاسخ حسگر گاز به صورت نسبت مقاومت حسگر در هوای تمیز  $R_{air}$  به مقاومت آن در هوای آلوده  $R_g$  در نظر گرفته شده است:

$$\text{پاسخ حسگر} = \frac{R_{air}}{R_g} \quad (2)$$

عملکرد پیش تغلیظ نیز با استفاده از محاسبه ضریب تغلیظ (CF) تعیین می‌شود. در ادبیات زمینه تعاریف متفاوتی برای CF ارائه شده



شکل (۲): پاسخ حسگر گاز در (الف) دماهای رهاسازی متفاوت (ب) سرعت‌های متفاوت جریان گاز در مرحله جذب، (ج) سرعت‌های متفاوت جریان گاز در مرحله رهاسازی، (د) آزمایش اثر زمان جذب، (ه) آزمایش تغییر جرم جاذب. اندازه‌گیری‌ها در سرعت ۲۰۰۰ ml/min در دوره جذب، سرعت جریان هوای ۴ ml/min در دوره رهاسازی، دمای رهاسازی ۴۵۰ °C و غلظت گاز ۱۰ ppm انجام شده است

گاز استون رسم شده است. مشاهده می‌شود با استفاده از پیش‌تغلیظ گاز پاسخ حسگر به غلظت‌های متفاوت گاز چند برابر شده است. پاسخ حسگر TGS2602 به غلظت ۱ ppm از گاز استون بدون پیش‌تغلیظ ۱/۰۱ است درحالی‌که پس از انجام پیش‌تغلیظ با همان غلظت اولیه گاز هدف، پاسخ حسگر به ۳/۳۵ بهبودیافت مقادیر بهبود به ازای ۱۰ ppm گاز هدف تغییر پاسخ از ۱/۳ به حدود ۹ را دارد. منحنی

می‌شود. افزایش دمای رهاسازی تا جایی مؤثر است که تمام گازهای جذب‌شده رهاسازی شوند. افزایش دمای رهاسازی تا ۶۰۰ درجه سانتیگراد نیز بررسی شد لیکن در دماهای بیشتر از ۴۵۰ درجه سانتیگراد هیچ تفاوتی در پاسخ پیش‌تغلیظ‌گر مشاهده نشد و عملاً منحنی‌های نشان داده شده در شکل ۲-الف روی هم می‌افتادند و از منحنی مربوط به رهاسازی در ۴۵۰ درجه سانتیگراد قابل تفکیک نبودند. این امر به رهاسازی کامل مواد جذب شده در این دما نسبت داده شد. و دمای ۴۵۰ °C دمای بهینه رهاسازی تعیین شد که دمای رهاسازی برای این جاذب در تمام تست‌های بعدی ۴۵۰ °C در نظر گرفته شد. با افزایش سرعت حرکت گاز طی مرحله جذب حجم بیشتری از گاز از روی جاذب عبور کرده لذا ضریب پیش‌تغلیظ بهبود می‌یابد (شکل ۲-ب). همچنین با افزایش سرعت گاز طی مرحله رهاسازی به دلیل رقیق شدن گاز، ضریب پیش‌تغلیظ کوچک می‌شود (شکل ۲-ج). برای بررسی این مسئله سرعت‌های متفاوت پمپ برای مرحله جذب و رهاسازی به‌طور جداگانه آزمایش شدند و تأثیر آن بر پاسخ حسگر بررسی شد.

تأثیر زمان جذب بر پاسخ حسگر بررسی شد و نتیجه آن در شکل ۲-د نشان داده شده است. مشاهده شد افزایش زمان پیش‌تغلیظ گر این امکان را برای جاذب فراهم می‌کند که مولکول‌های بیشتری از گاز هدف را جذب کند. تنها زمانی‌که جاذب به حد اشباع خود برسد افزایش زمان جذب تأثیری در پاسخ حسگر نخواهد داشت. در کار حاضر زمان‌های جذب ۵، ۱۰، ۲۰ و ۳۰ دقیقه بررسی شدند و نشان داده شد که با افزایش زمان پاسخ حسگر افزایش می‌یابد ولیکن در زمان جذب سی دقیقه جاذب اشباع می‌شود و لذا افزایش زمان جذب بیش از این مقدار تغییری در پاسخ حسگر ایجاد نمی‌کند و لذا در شکل ۲-د نشان داده نشده است. اگرچه افزایش زمان جذب پاسخ حسگر را افزایش می‌دهد لیکن باعث کندی سیستم می‌شود و بررسی‌ها را زمان‌بر می‌کند لذا زمان بیست دقیقه انتخاب شد. اگر زمان سی دقیقه انتخاب می‌شد نتایج بهتری حادث می‌شد که بهای آن افزایش زمان انجام تست‌ها بود.

ظرفیت جذب در مواد جاذب عموماً بصورت مقدار ماده جذب شده در واحد جرم جاذب تعریف می‌شود و نشان می‌دهد که با افزایش جرم جاذب مقدار ماده جذب شده بطور خطی بالا می‌رود. البته مسائلی مانند کند شدن شار گاز در مسیر عبور از جاذب باعث ایجاد اختلالاتی در سامانه می‌شود اما از نظر تئوری رابطه خطی وجود دارد. در کار حاضر رابطه پاسخ حسگر با تغییر جرم جاذب بررسی شد و نتایج در شکل ۲-ه نشان داده شده است.

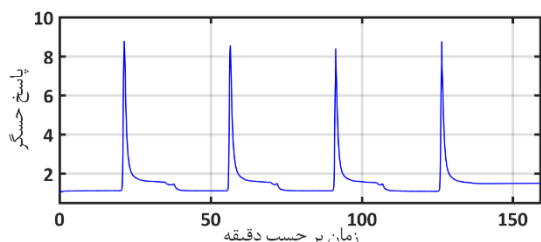
غلظت گاز هدف در غلظت‌های ۱، ۴، ۶ و ۱۰ ppm تغییر داده شد و پاسخ حسگر بدون سامانه پیش‌تغلیظ و با سامانه پیش‌تغلیظ ثبت شد. پاسخ گذرای حسگر مجهز به سامانه پیش‌تغلیظ‌گر در شکل (۳-الف) نشان داده شده است. در شکل (۳-ب) نیز منحنی پاسخ حسگر بدون استفاده از پیش‌تغلیظ و با استفاده از آن به ازای غلظت‌های مختلف



مربوط به ۱۰ ppm استون حدود ۳٫۷٪ محاسبه شد. در قدم بعدی باید دید این مقدار خطای اندازه‌گیری چقدر خطا در محاسبه غلظت ایجاد می‌کند. برای این کار ابتدا رابطه پاسخ حسگر در غلظت تخمینی پیش تغلیظ‌گر محاسبه شد. از آنجا که غلظت تغلیظ شده به ازای ۱۰ ppm حدود ۴۵۷ ppm است تابع پاسخ حسگر حول این نقطه محاسبه شد و رابطه به صورت زیر است:

$$SR = 0.1046.C + 3.82 \quad (۵)$$

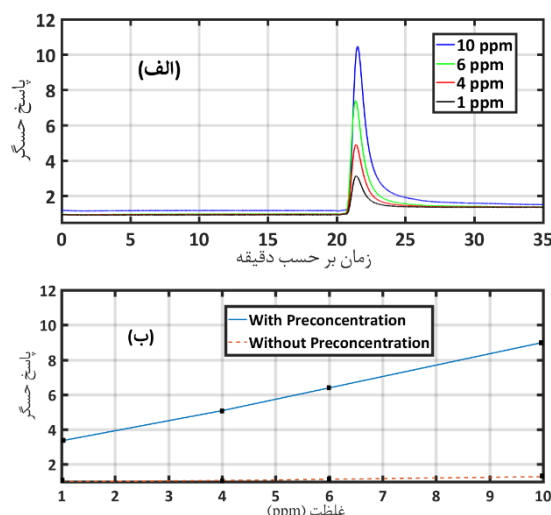
که در آن  $C$  غلظت و  $SR$  مقدار پاسخ حسگر است. چنانچه ۳٫۷ درصد خطای اندازه‌گیری پاسخ وجود داشته باشد منجر به خطایی حدود ۷٪ در تخمین مقدار غلظت خواهد بود. در تست‌هایی که با تنفس بیمار انجام شود لازم است حد مجاز خطا در تخمین غلظت استون دقیقاً مشخص شود و ترتیبی داده شود تا خطای اندازه‌گیری از خطای مجاز کمتر باشد. نتایج بررسی تکرارپذیری پیش تغلیظ‌گر با سامانه طراحی شده برای چهار اندازه‌گیری متوالی در شکل ۴ نشان داده شده است.



شکل (۴): پاسخ حسگر مجهز به پیش تغلیظ‌گر در پاسخ به ۱۰ ppm گاز استون که چهار بار تکرار شده است و تکرارپذیری پاسخ حسگر مجهز به پیش تغلیظ‌گر را نشان می‌دهد

در تنفس انسان بیش از ۲۰۰ جز شیمیایی وجود دارد که استون یکی از آنها است. بعلاوه عدم انتخاب‌گری حسگرهای گاز تشخیص استون از بین این همه ماده شیمیایی توسط یک حسگر گاز امکان‌پذیر نیست و لازم است حتماً از بینی الکترونیکی استفاده شود ولیکن برای استفاده از بینی الکترونیکی لازم است اجزای آن که حسگرهای گاز هستند قابلیت احساس گاز در محدوده موجود در تنفس را داشته باشند. کار حاضر با این هدف انجام شده است که با کمک پیش تغلیظ‌گر طراحی شده آستانه تشخیص گاز توسط حسگر بهبود یابد تا در قدم‌های بعدی بتوان از آن در سامانه‌های تشخیصی دیابت یا تعیین سطح متابولیسم در افراد دارای رژیم‌های کتوژنیک که منجر به افزایش استون در تنفس افراد می‌شوند استفاده کرد. در این پژوهش نشان داده شد که تجهیز حسگر گاز به پیش تغلیظ‌گر استون با ژنولیت سبب افزایش کارایی حسگر تجاری شده است. روش پیشنهادی علاوه بر اینکه گام مهمی در تشخیص دیابت از تنفس می‌باشد راه‌کار مناسبی برای تشخیص سایر گازها در مقادیر اندک با اهداف گوناگون نظیر تشخیص سایر بیماری‌ها از تنفس یا تشخیص نشت گاز و ... خواهد بود به شرط آن‌که از جاذب مناسب استفاده گردد.

(شکل ۳-ب) نشان می‌دهد که کارایی حسگر TGS2602 با استفاده از سامانه پیش تغلیظ‌گر بهبود پیدا کرده است و از یک حسگر ناکارآمد در محدوده غلظت استون تنفسی به یک حسگر کارآمد و قابل‌اعتماد در این محدوده تبدیل شده و توانایی آشکارسازی گاز هدف از حد آستانه تشخیص حسگر افزایش یافته است. محاسبه ضریب پیش تغلیظ بر پایه رابطه (۳) نشان می‌دهد که تقریباً ۴۵٫۷ برابر غلظت گاز افزایش یافته است. برای مثال ۱۰ ppm از گاز استون بعد از پیش تغلیظ به حدود ۴۵۷ ppm در محفظه تست می‌رسد. در شرایط مشابه رفتار جاذب‌های دیگری نظیر سیلیکا ژل و کربن فعال بررسی شد که مشخص شد سیلیکا ژل ۱۶٪ و کربن فعال ۲٪ ژنولیت A کارایی دارند و عملاً برای پیش تغلیظ استون مناسب نیستند.



شکل (۳): پاسخ گذرای حسگر مجهز به پیش تغلیظ‌گر (الف) و پاسخ استاتیک حسگر با و بدون پیش تغلیظ‌گر (ب) در غلظت‌های ۱۰-۱ ppm گاز استون. اندازه‌گیری‌ها در سرعت ۲۰۰ ml/min در دوره جذب، سرعت جریان هوای ۴ ml/min در دوره رهاسازی، دمای رهاسازی ۴۵۰ °C و جذب در ۲۰ دقیقه انجام شده است

برای استفاده از این سامانه در تشخیص مقدار گاز لازم است خطای تشخیص محاسبه گردد. برای محاسبه خطا ابتدا لازم است خطای اندازه‌گیری محاسبه شود. سپس مشخص شود این خطای اندازه‌گیری در پاسخ حسگر منجر به چه خطایی در محاسبه غلظت گاز می‌شود. این محاسبات را برای ۱۰ ppm انجام داده و با توجه به خطی بودن نمودارها در ناحیه مورد بحث، نتایج را به کل بازه اندازه‌گیری تعمیم می‌دهیم. برای اندازه‌گیری خطا از روش مجموع مربعات استفاده شد:

$$er = \frac{\sqrt{\sum (x_i - \bar{x})^2}}{\bar{x}} * 100 \quad (۴)$$

که در آن  $x_i$  پاسخ حسگر در هر بار اندازه‌گیری و  $\bar{x}$  متوسط اندازه‌گیری‌ها است. مقدار درصد خطا در چند بار تکرار اندازه‌گیری‌های

## ۴- نتیجه‌گیری

از آن‌جا که اندازه‌گیری استون در غلظت‌های کم در شناسایی و تشخیص بیماری دیابت اهمیت دارد لذا در کار حاضر از حسگر TGS2602 برای تشخیص استون در غلظت‌های کم استفاده شد. مشاهده شد که پاسخ حسگر برای غلظت‌های کمتر از ۱۰ ppm استون نزدیک به آستانه تشخیص حسگر است. برای افزایش پاسخ، حسگر به یک سامانه پیش تغلیظ‌گر مجهز شد که در آن زئولیت A به عنوان جاذب به کار رفت و برای ایجاد فرآیند جذب و رهاسازی از یک لوله کوارتز بهره گرفته شد. فرآیند جذب و رهاسازی گاز استون در زئولیت، توسط چرخه‌های گرمایی به صورت تکرارپذیر بررسی شد و مشخص شد این نوع زئولیت عملکرد مناسبی در جذب و رهاسازی استون دارد. اثر نرخ شار هوا طی مرحله جذب و رهاسازی بررسی شد. نتایج نشان دادند با افزایش نرخ شار هوا طی مرحله جذب و رهاسازی، ضریب تغلیظ به ترتیب افزایش و کاهش می‌یابد. لذا برای به‌دست آوردن ضریب تغلیظ بهینه نرخ شار هوا در مرحله جذب بیشینه و در رهاسازی کمینه در نظر گرفته شد. بررسی اثر زمان جذب، غلظت گاز هدف و مقدار جاذب بر ضریب تغلیظ نشان دادند افزایش هر یک از این سه عامل باعث بهبود ضریب تغلیظ می‌شود. با مجهز شدن حسگر تجاری به سامانه پیش‌تغلیظ‌گر با جاذب زئولیت A، توانایی حسگر در شناسایی گاز هدف در مقادیر کمتر از حد آستانه تشخیص حسگر افزایش می‌یابد بدون آن که در ماهیت حسگر تغییری ایجاد شود. با استفاده از روش فوق غلظت ۱۰ ppm از گاز استون بعد از پیش تغلیظ به حدود ۴۵۷ ppm در محفظه تست رسید.

## مراجع

- [1] Rydosz, A., "Micropreconcentrators in silicon-glass technology for the detection of diabetes biomarkers", J. Microelectr. Electr. Compon. Mater, Vol. 44, pp. 126-136, 2014.
- [2] Cho, S.M., et al., "Two-step preconcentration for analysis of exhaled gas of human breath with electronic nose", Sensors and Actuators B: Chemical, Vol. 117(1), pp. 50-57, 2006.
- [3] Camara, E., et al., "Micro gas preconcentrator in porous silicon filled with a carbon absorbent", Sensors and Actuators B: Chemical, Vol. 148(2), pp. 610-619, 2010.
- [4] Salehi, S., et al., "Highly sensitive carbon nanotubes-SnO<sub>2</sub> nanocomposite sensor for acetone detection in diabetes mellitus breath", Sensors and Actuators B: Chemical, Vol. 205, pp. 261-267, 2014.
- [5] Wang, Z. and C. Wang, "Is breath acetone a biomarker of diabetes? A historical review on breath acetone measurements", Journal of breath research, Vol. 7(3), p. 037109, 2013.
- [6] Rydosz, A., et al., "A gas micropreconcentrator for low level acetone measurements", Microelectronics Reliability, Vol. 52(11), pp. 2640-2646, 2012.
- [7] Andrysiewicz, W., et al., "Flexible Gas Sensor Printed on a Polymer Substrate for Sub-ppm Acetone Detection", Electronic Materials Letters, Vol. 16(2), pp. 146-155, 2020.
- [8] کیانی، محمدجواد، صالحی، علیرضا، "لایه نشانی نازک سنسور گازی مبتنی بر نیمه هادی اکسید قلع با روش غوطه وری"، مجله مهندسی برق و الکترونیک ایران، جلد (۴) ۱۳، ۶۵-۷۰، ۱۳۹۵.
- [9] نصیریان، شه روز، شکروی، محمدمهدی، "مطالعه اثر رطوبت بر خصوصیات حسگر گاز دی اکسید کربن نانو سیم های اکسید روی حمایت شده به وسیله ی شبکه پلی وینیل الکل در دمای اتاق"، مجله مهندسی برق و الکترونیک ایران، جلد (۲) ۱۶، ۷-۱، ۱۳۹۸.
- [10] Alfeeli, B., L.T. Taylor, and M. Agah, "Evaluation of Tenax TA thin films as adsorbent material for micro preconcentration applications", Microchemical Journal, Vol. 95(2), pp. 259-267, 2010.
- [11] Rydosz, A., et al., "Various preconcentrator structures for determination of acetone in a wide range of concentration", THEORETICAL AND APPLIED ELECTRICAL ENGINEERING, Vol. 14, pp. 59-65, 2016.
- [12] Rydosz, A., et al. "The gas micropreconcentrators in LTCC and MEMS technologies for breath acetone analysis", in 2012 IEEE Electrical Design of Advanced Packaging and Systems Symposium (EDAPS), 2012.
- [13] Qin, T., et al., "A simple method for the trace determination of methanol, ethanol, acetone and pentane in human breath and in the ambient air by preconcentration on solid sorbents followed by gas chromatography", Talanta, Vol. 44(9), pp. 1683-1690, 1997.
- [14] Alfeeli, B., M.A. Zareian-Jahromi, and M. Agah, "Micro preconcentrator with seedless electroplated gold as self-heating adsorbent", in SENSORS, , 2009.
- [15] Kuo, C.-Y., et al. "Development of new micro gas preconcentrator using novel electroless gold plating process", in Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (TRANSDUCERS), 2015 Transducers-2015 18th International Conference on, 2015.
- [16] Gràcia, I., et al., "Sub-ppm gas sensor detection via spiral  $\mu$ -preconcentrator", Sensors and Actuators B: Chemical, Vol. 132(1), pp. 149-154, 2008.
- [17] Chudasama, C.D., J. Sebastian, and R.V. Jasra, "Pore-size engineering of zeolite A for the size/shape selective molecular separation", Industrial & engineering chemistry research, Vol. 44(6), pp. 1780-1786, 2005.
- [18] Goldoust, R. and S. Rahbarpour, "Design and implementation of a preconcentrator with Zeolite NaY for sensitivity enhancement of commercial gas sensors at low NO<sub>2</sub> concentrations", Materials Research Express, Vol. 6(1), 2019.
- [19] Zhang, D., et al., "Room-temperature high-performance acetone gas sensor based on hydrothermal synthesized SnO<sub>2</sub>-reduced graphene oxide hybrid composite", Rsc Advances, Vol. 5(4), pp. 3016-3022, 2015.
- [20] Rydosz, A., et al., "A micropreconcentrator design using low temperature cofired ceramics technology for acetone detection applications". IEEE Sensors Journal, Vol. 13(5), pp. 1889-1896, 2013.