## УДК: 537.86

# МАГНИТНОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ МОДЕЛЬНЫХ ОБРАЗЦОВ С ПОМОЩЬЮ МАГНИТОИМПЕДАНСНОГО ДЕТЕКТОРА СЛАБЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЕЙ, ИМИТИРУЮЩИХ СХЕМЫ БИОМЕДИЦИНСКИХ ПРИЛОЖЕНИЙ

Пасынкова Анна Александровна<sup>1,2</sup>, Тимофеева Анастасия Владимировна<sup>1</sup>, Лукшина Вера Анатольевна<sup>1</sup>, Мельников Григорий Юрьевич<sup>2</sup>, Курляндская Галина Владимировна<sup>2</sup> <sup>1</sup>ФГБУН Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской

## академии наук

<sup>2</sup>Институт естественных наук и математики

ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

Екатеринбург, Россия

#### Аннотация

Введение. Аморфные ленты в качестве чувствительных элементов детекторов слабых магнитных полей, работающих на основе магнитоимпедансного эффекта (МИ), могут быть использованы как для медицинской диагностики, так и в различных схемах терапии. В частности, для адресной доставки лекарств с биосовместимыми магнитными частицами, в имплантологии при определении позиции дополнительных элементов как альтернатива хирургическим процедурам высокого риска, при оценке особенностей динамики кровотока в нормальных или подверженных морфологическим изменениям сосудах. Цель исследования изучить особенности процесса магнитного детектирования с помощью МИ элемента в виде аморфных лент на основе кобальта в присутствии полей рассеяния, создаваемых эпоксидными композитами, наполненными микрочастицами оксида железа различной концентрации, имитирующими схемы биомедицинских приложений. Материал и методы. Аморфные ленты состава Fe3Co67Cr3Si15B12 были получены методом быстрой закалки на барабане и прошли термомеханическую обработку. Магнитные свойства были проанализированы с использованием вибрационного магнитометра, магнитоимпедансной спектроскопии. Композиты были изготовлены путем наполнения полимерных матриц частицами оксида железа, их состав был установлен при помощи рентгенофазового анализа. Результаты. Было установлено, что для чувствительных элементов на основе аморфных лент существует линейная зависимость магнитоимпедансного эффекта от концентрации микрочастиц оксида железа в эпоксикомпозите. Соотношение длины к ширине ленты играет важную роль при анализе магнитоимпедансного отклика. Выводы. Наиболее чувствительным по отношению к внешнему магнитному полю, создаваемому эпоксикомпозитами с включениями магнитных микрочастиц были элементы на основе лент длиной 4,5 см и шириной 0,8 мм, демонстрирующие линейную зависимость с наклоном 1% на весовой процент концентрации частиц. Было показано немонотонное влияние композитов с высокой концентрацией микрочастиц на магнитоимпедансный эффект ГМИ, что подчеркивает важность учета формы и распределения по объему магнитных частиц в детектируемых образцах.

Ключевые слова: магнитоимпедансный эффект, магнитные частицы, аморфные ленты.

# MAGNETIC DETECTION OF MODEL SAMPLES BY A MAGNETOIMPEDANCE DETECTOR OF WEAK MAGNETIC FIELDS SIMULATING SCHEMES OF BIOMEDICAL APPLICATIONS

Pasynkova Anna Aleksandrovna<sup>1,2</sup>, Timofeeva Anastasia Vladimirovna<sup>1</sup>, Lukshina Vera Anatolyevna<sup>1</sup>, Melnikov Grigory Yurievich<sup>2</sup>, Kurlyandskaya Galina Vladimirovna<sup>2</sup>

<sup>1</sup>M.N. Mikheev Institute of Metal Physics of Ural Branch of Russian Academy of Sciences

<sup>2</sup>Institute of Natural Sciences and Mathematics

Ural Federal University named after the first President of Russia B.N. Yeltsin

Yekaterinburg, Russia

#### Abstract

**Introduction**. Amorphous ribbons as sensitive elements of small magnetic field detectors operating based on the magnetioimpedance (MI) effect can be used both for medical diagnostics and in various therapeutic schemes. This is implemented in the targeted drug delivery with biocompatible magnetic particles, in implantology when determining the position of additional elements as an alternative to high-risk surgical procedures, when assessing the characteristics of blood flow dynamics in normal or morphologically altered vessels. **The aim was** to study the features of the magnetic detection process using an MI element in the form of amorphous cobalt-based ribbons in the presence of stray fields created by epoxy composites filled with iron oxide microparticles of various concentrations, simulating circuits for biomedical applications. **Material and methods.** Amorphous ribbons of the composition Fe3Co67Cr3Si15B12 were obtained by rapid quenching on a drum and underwent thermomechanical processing. Magnetic properties were analyzed using vibrating magnetometer, magnetic impedance spectroscopy. The composites were made by filling polymer matrices with iron oxide particles, and their composition was determined using X-ray phase analysis. **Results**. It was found that

for sensitive elements based on amorphous tapes, there is a linear dependence of the magnetic impedance effect on the concentration of iron oxide microparticles in the epoxy composite. The ratio of length to width of the tape plays an important role in the analysis of magnetic impedance response. **Conclusion**. The most sensitive to the external magnetic field created by epoxy composites with inclusions of magnetic microparticles were elements based on tapes 4.5 cm long and 0.8 mm wide, demonstrating a linear relationship with a slope of 1% per weight percent of particle concentration. The non-monotonic influence of composites with a high concentration of microparticles on the magnetic impedance effect of GMI was shown, which emphasizes the importance of taking into account the shape and volume distribution of magnetic particles in the detected samples.

Keywords: magnetic impedance effect, magnetic particles, amorphous ribbons.

## введение

Ежегодно в России выявляется свыше 80000 новых случаев венозных тромбоэмболических осложнений, что указывает на актуальность разработки вопросов диагностики и лечения [1]. Методы адресной доставки лекарственных средств (в т.ч. тромболитиков) являются одной из современных тем исследований [2]. Направленная доставка лекарств к тромбам с использованием биосовместимых частиц магнетита может быть использована в качестве альтернативы хирургическим процедурам высокого риска. Для обнаружения полей рассеяния от агломератов магнитных частиц в области тромба могут использоваться высокочувствительные элементы на основе магнитоимпедансного эффекта, позволяющие оценить локальную концентрацию. Гигантский магнитоимпедансный (ГМИ) эффект это один из методов исследования магнитных свойств ферромагнитных проводников [3]. ГМИ эффект возникает в результате динамического изменения магнитной проницаемости под влиянием различных факторов, влияющих на величину глубины скин-слоя, и обеспечивает спектроскопическую оценку свойств материала в широком диапазоне частот.

Быстрозакаленные сплавы на основе кобальта, особенно легированные хромом или молибденом, демонстрируют превосходные механические и магнитные свойства, также являются хорошими кандидатами на роль чувствительных элементов с высоким ГМИ эффектом [4-5]. Методы постобработки, такие как отжиг под напряжением, могут еще больше улучшить ГМИ отклик за счет управления эффективной магнитной анизотропией [4].

Исследование свойств объектов сложной формы интересно и в контексте неразрушающего контроля. Результаты по обнаружению и распознаванию при помощи ГМИ элемента плоских ферромагнитных объектов можно найти в работе [6]. Для других модельных объектов, таких как полиакриламидные гели и феррогели (с включениями магнитных частиц), в контексте ГМИ детектирования существенную роль играет наличие воды [7]. Разработки в данном направлении складываются в работу над большой инженерной задачей определения положения и геометрии микро- или макрообъекта неразрушающими методами. ГМИ эффект для этой цели является перспективным ввиду очень высокой чувствительности к внешнему полю.

**Цель исследования** – изучить влияние магнитных свойств и параметров формы аморфных лент на основе кобальта в присутствии полей рассеяния, создаваемых эпоксидными композитами, наполненными микрочастицами оксида железа различной концентрации.

#### МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ

Аморфные ленты состава Fe3Co67Cr3Si15B12 были получены методом быстрой закалки на барабане, а затем прошли термомеханическую обработку при температуре  $350^{\circ}$ , времени выдержки 1 час, величине нагрузки 230 МПа. Длина × ширина × толщина лент составляли  $45 \times 0.8 \times 0.024$  мм<sup>3</sup> (S1),  $18 \times 0.8 \times 0.024$  мм<sup>3</sup>(S2),  $45 \times 2 \times 0.032$  мм<sup>3</sup> (S3) (см. таблицу 1, рис. 1). Фазовый состав коммерческих микрочастиц исследовался с помощью рентгенофазового анализа, а форма и размеры частиц оценивались с помощью сканирующей электронной микроскопии. Композиты были изготовлены путем наполнения полимерных матриц микрочастицами оксида железа с различной массовой долей микрочастиц. Композиты имели цилиндрическую форму с диаметром 5 мм и высотой 4 мм (рис. 1), они были предварительно намагничены в поле 2 T перед помещением над элементом в форме ленты и измерением ГМИ свойств для того, чтобы обеспечить высокую чувствительность детектирования и повторяемость результатов. Магнитные свойства были проанализированы с

использованием вибрационного магнитометра. Гигантский магнитоимпедансный эффект измерялся с помощью автоматизированного комплекса на основе Agilent HP e4991A [3]. ГМИ отношение полного импеданса рассчитывалось по формуле:  $\Delta Z/Z$  (H) = 100% × ( $\Delta Z/Z$  (H) -  $\Delta Z/Z$  (H<sub>max</sub>))/ $\Delta Z/Z$  (H<sub>max</sub>), H<sub>max</sub>=130 Э.



Рис.1 Общий вид микрочастиц FeOx (сканирующая электронная микроскопия) и МИ чувствительных элементов в виде быстрозакаленных аморфных лент, смонтированных на держателе типа «микрострайп» и образцов эпоксикомпозитов без микрочастиц и с концентрацией микрочастиц оксида железа 70%

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Для эпоксидных композитов с микрочастицами была проведена общая структурная оценка, в результате которой было установлено, что микрочастицы FeOx содержат фазы Fe3O4 (92 мас. %) и FeO(OH) (8 мас. %) [8]. Средний размер частиц Fe3O4 составил 240 нм, форма частиц близка к сферической. Для контрольного композита без магнитных частиц наблюдался слабый диамагнитный отклик. Для аморфных лент Fe-Co-Cr-Si-B в результате термомеханического отжига было получено снижение коэрцитивной силы и более высокие значения поля анизотропии На по сравнению с закаленным состоянием, значение намагниченности насыщения соответствовало литературным данным.

ГМИ отклик аморфных лент совпадал в пределах погрешности (2%) в присутствии и отсутствии композита с нулевой концентрацией магнитных частиц. Предыдущее исследование показало, что лента длиной более 2 см после термомеханической обработки демонстрирует наибольшую чувствительность гигантского магнитоимпедансного эффекта к внешнему магнитному полю, что связано с минимизацией вклада полей рассеяния на концах ленты [9], и это подтверждалось данными настоящего исследования. Внесение композита повышало значение поля анизотропии и смещало пик ГМИ в область более высоких полей для элемента с самым высоким ГМИ эффектом (S1) (рис. 2). Для него зависимость ГМИ отношения ΔZ/Z от весовой концентрации магнитных частиц в эпоксикомпозите была линейной, чувствительность составила 1 %/вес. % концентрации микрочастиц. С уменьшением длины ленты (от S1 к S2) сдвиг пика ГМИ сохранялся, и наблюдалось немонотонное изменение ГМИ отношения аморфной ленты в определенном диапазоне полей (1-8 Э) при высоких концентрациях оксида железа в композите (50% и 70%). ГМИ отклик при детектировании эпоксикомпозитов при помощи образца S3 был меньше, чем для образца S1. Таблица 1.

| Образцы    | Длина, мм | Ширина, мм/высота, мкм | На, Э | $(\Delta Z/Z)_{max}, \%/\Im$ |
|------------|-----------|------------------------|-------|------------------------------|
| S1         | 45        | 0,8 / 25               | 3,3   | 255                          |
| S2         | 18        | 0,8 / 25               | 3,3   | 189                          |
| <b>S</b> 3 | 45        | 2,0 / 32               | 3,5   | 173                          |

Основные параметры исследуемых лент

#### ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ магнитных свойств эпоксидных композитов с микрочастицами показал равномерное увеличение намагниченности насыщения с ростом концентрации микрочастиц в композитах, причем увеличение концентрации приводило к уменьшению расстояния между

агрегатами и появлению более крупных агрегатов. Наличие композитов с ненулевой концентрацией магнитных микрочастиц существенно не влияло на ГМИ свойства за пределами поля анизотропии и в области нулевого поля. Наиболее заметные различия наблюдались в диапазоне от 0,3 до 8,0 Э, так называемом рабочем интервале ГМИ элемента (рис. 2). Внесение композита над элементом в случае образца с самым высоким ГМИ эффектом (лента S1) приводило к смещению пика  $\Delta Z/Z$  в область более высоких полей и снижению значения  $\Delta Z/Z$ , что коррелировало с результатом, полученным для тонкопленочных элементов [8]. При этом зависимость ГМИ отношения  $\Delta Z/Z$  от весовой концентрации магнитных частиц в эпоксикомопозите описывалась линейной функцией с чувствительностью 1 %/вес. % концентрации микрочастиц (коэффициент корреляции Пирсона выше 0,99, рис. 2г).



Рис.2 Зависимость магнитоимпедансного отношения полного импеданса от внешнего магнитного поля при частоте переменного тока 21 МГц для элементов на основе аморфных лент (S1 – a, S2 – б, S3 – в) в присутствии эпоксикомпозитов с концентрацией микрочастиц оксида железа 30%, 70% и в отсутствии композитов. Концентрационная зависимость ГМИ отношения ленты S1 при H = 3,6 Э, S1' - линейная аппроксимация (г)

Сдвиг пика ГМИ в область больших полей для ленты меньшей длины S2 сохранялся и был обусловлен вкладом продольной компоненты полей рассеяния микрочастиц. Однако в области малых полей 1-8 Э для высоких концентраций оксида железа 50% и 70% в объемном эпоксикомпозите наблюдалось немонотонное изменение ГМИ отношения аморфной ленты (рис. 26). Полученный результат может быть связан с градиентом магнитного поля вдоль поверхности ленты, роль которого возрастает при рассмотрении более короткого среди рассмотренных образца S2 и требует дальнейшего детального изучения.

ГМИ отклик для образца S3 с большей шириной был меньше, чем для образца S1, что указывает на важную роль распределения локальной анизотропии по поперечному сечению образца. Присутствие эпоксикомпозита с наибольшей концентрацией микрочастиц 70% привело к изменению ГМИ эффекта S3 всего на 15%, тогда как для S1 оно составило 60%. В этом случае увеличение ширины образца, которая становится сопоставима с шириной эпоксикомпозита, приводит к увеличению степени неоднородности полей, создаваемых в ленте эпоксикомпозитом. Также это связано с меньшей величиной максимальной чувствительности более широкой ленты S3. Кроме того, для S3 в присутствии эпоксикомпозитов пик ГМИ сместился в сторону больших полей без существенного уменьшения значений  $\Delta Z/Z$ , то есть вклад поперечной компоненты полей рассеяния был минимален.

Вопрос о необходимости создания компактных, простых и недорогих устройств для медицинской диагностики и терапии становится все более актуальным [10-11]. Полученные результаты, при условии доработки сканирующей микросистемы, могут быть полезны для диагностики состояния сосудов, при лечении тромбоза и оценке особенностей динамики кровотока, а также в качестве дополнительной альтернативы рентгеновскому позиционированию, позволяющей существенно уменьшить суммарную дозу облучения пациента.

## выводы

1. МИ эффект в аморфных лентах исследовался как в отсутствие, так и в присутствии образцов в виде цилиндров с концентрацией магнитных микрочастиц оксида железа от 0 до 70%, имитирующих схемы биомедицинских приложений. Особенности создаваемых полей рассеяния композитных образцов зависели как от концентрации магнитных микрочастиц, так и от соотношения длины к ширине чувствительного МИ-элемента.

2. Наиболее чувствительным по отношению к внешнему магнитному полю, создаваемому эпоксикомпозитами с включениями магнитных микрочастиц, были элементы на основе лент длиной 4,5 см и шириной 0,8 мм, демонстрирующие линейную зависимость с наклоном 1% на весовой процент концентрации частиц. Данный результат позволяет предложить опробованную схему магнитного детектирования в качестве дополнительной альтернативы рентгеновскому позиционированию.

3. Показано немонотонное влияние композитов с высокой концентрацией микрочастиц на величину МИ эффекта, связанное с особенностями магнитного взаимодействия микрочастиц и, хотя и в меньшей степени, их распределением по объему.

Результаты были получены в рамках выполнения государственного задания Минобрнауки России FEUZ2023-0020. Авторы благодарны А.П. Сафронову и Е.А. Бурбан за сотрудничество.

## СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Бокерия, Л. А., Российские клинические рекомендации по диагностике, лечению и профилактике венозных тромбоэмболических осложнений (ВТЭО) / Л. А. Бокерия, И. И. Затевахин, А. И. Кириенко // Флебология. – 2015. – № 9(4). – С. 1–52.

2. Nano-Medicine for Thrombosis: A Precise Diagnosis and Treatment Strategy / M. Su, Q. Dai, C. Chen [et al.] // Nano-Micro Letters. – 2020. – Vol. 12. – article number 96.

3. Курляндская, Г. В. Магниточувствительные преобразователи для неразрушающего контроля, работающие на основе гигантского магнитоимпедансного эффекта / Г. В. Курляндская, Д. де Кос, С. О. Волчков // Дефектоскопия. – 2009. – № 6. – С. 13–42.

4. Giant magnetoimpedance strip and coil sensors / G. V. Kurlyandskaya, A. García-Arribas, J. M. Barandiarán, E. Kisker // Sensors and Actuators, A: Physical. – 2001. – Vol. 91, № 1-2. – P. 116–119.

5. An integrated giant magnetoimpedance biosensor for detection of biomarker / T. Wang, Z. Yang, C. Lei [et al.] // Biosensors & bioelectronics. - 2014. - Vol. 58. - P. 338-344.

6. Volchkov, S. O. Magnetoimpedance sensor for flat ferromagnetic body detection / S. O. Volchkov, G. V. Kurlyandskaya // Sensor Letters. – 2009. – Vol. 7, № 6. – P. 1147–1155.

7. Modelling of magnetoimpedance response of thin film sensitive element in the presence of ferrogel: Next step toward development of biosensor for in-tissue embedded magnetic nanoparticles detection / N. A. Buznikov, A. P. Safronov, I. Orue [et al.] // Biosensors & bioelectronics. – 2018. – Vol. 117. – P. 366–372.

8. Magnetoimpedance thin film sensor for detecting of stray fields of magnetic particles in blood vessel / G. Yu. Melnikov, V. N. Lepalovskij, A. V. Svalov [et. al.] // Sensors. -2021. - Vol. 21,  $N_{2} 11. - P. 3621$ .

9. Pasynkova, A. A. Functional properties of cobalt-based amorphous ribbons with different demagnetizing factor / A. A. Pasynkova, A. V. Timofeeva, V. A. Lukshina // SPIN. – 2023. – Vol. 13, № 2. – P. 2340001.

10. Mechanical, electrical and magnetic properties of ferrogels with embedded iron oxide nanoparticles obtained by laser target evaporation: focus on multifunctional biosensor applications / F. A. Blyakhman, N. A. Buznikov, T. F. Sklyar [et al.] // Sensors. -2018. - Vol. 18. - P. 872.

11. Design of spherical gel-based magnetic composites: synthesis and characterization / P. A. Shabadrov, A. P. Safronov, N. M. Kurilova, F. A. Blyakhman // Journal of Composites Science. – 2023. – Vol. 7. – P. 177.

#### Сведения об авторах

А.А. Пасынкова\* – кандидат физико-математических наук, доцент

А.В. Тимофеева – младший научный сотрудник

В.А. Лукшина – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник

Г.Ю. Мельников – аспирант, младший научный сотрудник

Г.В. Курляндская – доктор физико-математических наук, профессор

#### Information about the authors

A.A. Pasynkova\* - Candidate of Sciences (Physics and Mathematics), Associate Professor

A.V. Timofeeva - Researcher

V.A. Lukshina - Candidate of Sciences (Physics and Mathematics), Senior Researcher

G.Yu. Melnikov - PhD student, Researcher

G.V. Kurlyandskaya – Doctor of Sciences (Physics and Mathematics), Professor

\*Автор, ответственный за переписку (Corresponding author):

anna.chlenova@urfu.ru