

УДК 537.636,537.8;537.624

ДЕТЕКТИРОВАНИЕ СОВОКУПНЫХ ПОЛЕЙ РАССЕЙНИЯ НАНОЧАСТИЦ ФЕРРОГЕЛЕЙ С ПОМОЩЬЮ ПРОТОТИПА МАГНИТОИМПЕДАНСНОГО ДАТЧИКА: МОДЕЛЬНЫЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЯ И ЭКСПЕРИМЕНТ

© 2019 г. А. А. Членова^{1, *}, Н. А. Бузников², А. П. Сафронов^{1, 3}, Е. В. Голубева¹,
В. Н. Лепаловский¹, Г. Ю. Мельников¹, Г. В. Курляндская¹

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования
“Уральский федеральный университет имени Первого Президента России Б.Н. Ельцина”, Екатеринбург, Россия

²Общество с ограниченной ответственностью “Научно-исследовательский институт природных газов
и газовых технологий – Газпром ВНИИГАЗ”, Развилка, Россия

³Федеральное государственное бюджетное учреждение науки “Институт электрофизики Уральского отделения
Российской академии наук”, Екатеринбург, Россия

*E-mail: Anna.Chlenova@urfu.ru

Поступила в редакцию 07.09.2018 г.

После доработки 31.01.2019 г.

Принята к публикации 27.03.2019 г.

Разработан прототип биосенсора, работающего на основе гигантского магнитоимпедансного эффекта (ГМИ) с $[\text{Cu}/\text{FeNi}]_5/\text{Cu}/[\text{FeNi}/\text{Cu}]_5$ многослойным чувствительным элементом, адаптированным для исследований феррогелей. Измерения ГМИ в исходном состоянии и в присутствии феррогелей с различными концентрациями суперпарамагнитных наночастиц позволили характеризовать поля рассеяния ансамбля магнитных наночастиц в феррогелях. Описание с помощью предложенной электродинамической модели удовлетворительно согласуется с экспериментальными данными ГМИ пленочного элемента, покрытого феррогелем.

DOI: 10.1134/S0367676519070123

Создание чувствительного элемента для определения концентрации магнитных наночастиц, используемых в качестве магнитных биомаркеров или внедренных в живые ткани, – важная задача биоприложений [1, 2]. Принцип работы такого компактного аналитического устройства основан на измерении суммарных полей рассеяния наночастиц. Эффект гигантского магнитного импеданса (ГМИ) является перспективным кандидатом для создания ГМИ-биосенсора благодаря рекордной чувствительности ГМИ детекторов слабых магнитных полей [3]. Явление ГМИ заключается в значительном изменении импеданса ферромагнитного проводника при протекании по нему переменного тока в условиях приложения постоянного внешнего магнитного поля [4]. Исследования биологических объектов имеют определенные ограничения для их тестирования физическими методами, связанные с разнообразием взаимосвязанных сложных процессов, которые существуют в живом организме. Чтобы свести к минимуму эту неопределенность, в биофизических исследованиях часто разрабатывают матема-

тические и физические модели, которые воспроизводят выбранные функции и свойства живой системы. В частности, синтетические гидрогели могут быть использованы в качестве физической модели структурной организации клеток и тканей [5]. Использование синтетических модельных образцов позволяет не только улучшить статистику эксперимента, но и провести сравнение экспериментальных результатов и модельных представлений для случая детектирования суммарных полей рассеяния магнитных наночастиц, внедренных в живые ткани и расположенных на различных расстояниях от поверхности компактного аналитического устройства.

Данная работа является одним из этапов разработки ГМИ-биосенсора для определения концентрации магнитных наночастиц в живых тканях. Вместо биологических образцов нами были использованы синтетические феррогели – шитые гидрогели с включенными в их матрицу магнитными наночастицами. Для синтеза феррогелей применялись магнитные наночастицы оксида железа, полученные методом лазерного испарения

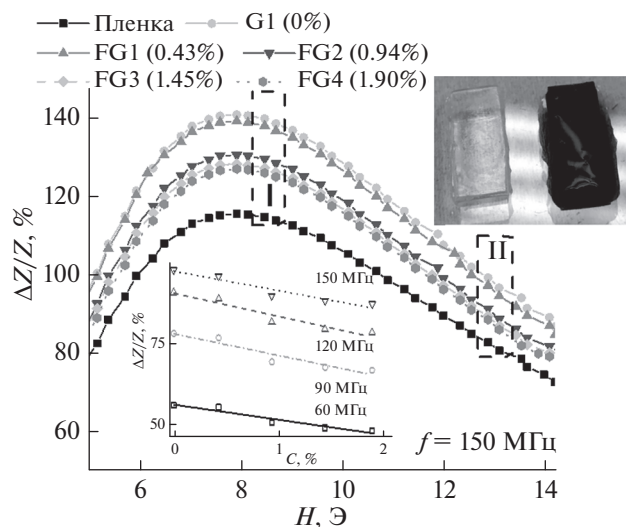


Рис. 1. Экспериментальная зависимость относительного изменения ГМИ отношения $[\text{Cu}/\text{FeNi}]_5/\text{Cu}/[\text{FeNi}/\text{Cu}]_5$ многослойного элемента от внешнего поля на частоте 150 МГц без покрытия или со слоем феррогеля с различной концентрацией магнитных наночастиц. Пунктирной линией показаны интервалы магнитных полей для эффективного детектирования феррогелевых покрытий: I – $H = 8$, II – $H = 13$ Э. На вставке – зависимость относительного изменения ГМИ от концентрации магнитных наночастиц в феррогелях при напряженности внешнего магнитного поля 13 Э. На фотографии показан внешний вид геля и феррогеля.

мишени из магнетита [5]. Их химический состав был определен окислительно-восстановительным титрованием и анализом межплоскостных расстояний. Феррогели были синтезированы путем сшивания полиакриламида, полученного методом радикальной полимеризации акриламида в водном растворе наночастиц. В качестве сшивающего агента был использован N,N'-метилен-диакриламид. Средний размер наночастиц $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ составлял около 20 ± 3 нм. Концентрация магнитных наночастиц в феррогелях варьировалась следующим образом: G1 – 0.00 вес. %; FG1 – 0.43, FG2 – 0.94, FG3 – 1.45, FG4 – 1.90 вес. %. Внешний вид образцов геля (G1) и феррогеля (FG4) представлен на рис. 1, их линейные размеры: $9 \times 4 \times 1$ мм, масса около 30 ± 0.5 мг.

Чувствительный элемент прототипа ГМИ-биосенсора представлял собой тонкопленочную структуру $[\text{Cu}(3 \text{ нм})/\text{FeNi}(100 \text{ нм})]_5/\text{Cu}(500 \text{ нм})/[\text{FeNi}(100 \text{ нм})/\text{Cu}(3 \text{ нм})]_5$, полученную методом магнетронного распыления на стеклянную подложку (прямоугольник 1×10 мм). Измерения ГМИ были проведены с помощью автоматизированного комплекса магнитоимпедансной спектроскопии, основу которого составлял анализатор импеданса Agilent E4991A [6], в диапазоне частот

тока возбуждения 1–400 МГц. Относительное изменение ГМИ (полного импеданса) во внешнем поле H определялось следующим образом: $\Delta Z/Z = 100\% \times (Z(H) - Z(H_{\text{max}}))/Z(H_{\text{max}})$, где $H_{\text{max}} = 100$ Э – максимальное поле.

Несмотря на то, что максимальная чувствительность ГМИ многослойного элемента без покрытия феррогелем $(d(\Delta Z/Z)/dH)_{\text{max}}$ к внешнему магнитному полю наблюдалась при частоте тока возбуждения 80 ± 10 МГц, процесс детектирования суммарных полей рассеяния магнитных наночастиц при частоте 150 МГц можно характеризовать как устойчивый. Результаты измерений ГМИ откликов с использованием феррогелей различной концентрации представлены на рис. 1. Можно заметить, что зависимость ГМИ от концентрации магнитных наночастиц при фиксированном значении напряженности внешнего поля линейна. При частоте 150 МГц и напряженности внешнего магнитного поля 8 Э чувствительность прототипа датчика к изменению концентрации наночастиц составляет около 8.2% относительно изменения полного импеданса на весовой процент наночастиц, а при напряженности внешнего магнитного поля 13 Э чувствительность составляет около 6.2% относительно изменения полного импеданса на весовой процент наночастиц. Таким образом, датчик ГМИ с пленочным элементом позволяет детектировать даже очень малое количество магнитных наночастиц в биомиметике или живой ткани.

Для описания экспериментальных результатов предложена аналитическая модель отклика ГМИ многослойной пленки со слоем феррогеля. Так как длина и ширина пленки существенно больше ее толщины, можно считать, что электромагнитные поля зависят только от одной координаты. Распределение полей в пленке найдено из решения уравнений Максвелла с соответствующими условиями непрерывности полей на границах слоев пермаллоя и меди. Предполагалось, что слой феррогеля создает пространственно однородное поле рассеяния H_p . Величина поля H_p пропорциональна концентрации магнитных наночастиц в феррогеле, так как намагниченность насыщения феррогеля линейно возрастает с увеличением концентрации магнитных наночастиц [7]. Поле рассеяния изменяет распределение намагниченности в слоях пермаллоя и влияет на магнитную проницаемость пленки, что приводит к изменению ГМИ образца в присутствии слоя феррогеля. Зависимости $\Delta Z/Z$ от внешнего поля, рассчитанные для пленки без слоя феррогеля, с гелем без магнитных наночастиц ($H_p = 0$) и для феррогеля при различных значениях H_p , представлены на рис. 2. Результаты расчетов качественно описывают на-

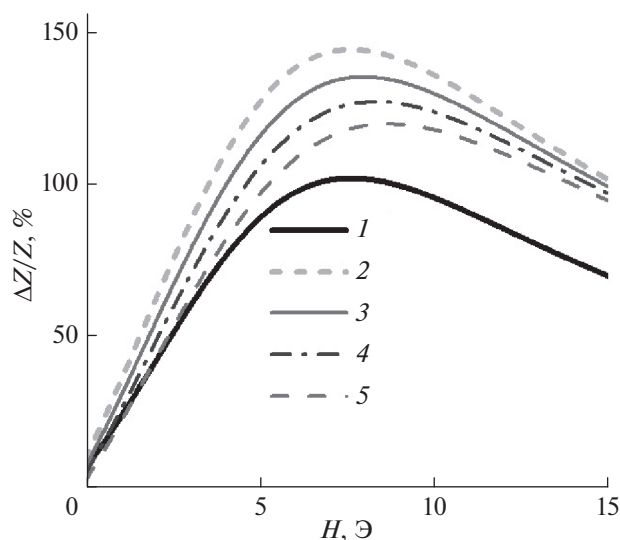


Рис. 2. Рассчитанная зависимость относительного изменения ГМИ от внешнего поля при частоте 150 МГц и различных значениях эффективного поля рассеяния H_p : 1 – пленка без феррогелевого покрытия; 2 – $H_p = 0$; 3 – $H_p = 0.25$; 4 – $H_p = 0.5$; 5 – $H_p = 1$ Э.

блюдавшиеся в эксперименте зависимости ГМИ от поля при изменении концентрации магнитных наночастиц в феррогеле.

В данном исследовании был предложен и исследован прототип ГМИ-биосенсора с

$[\text{Cu}/\text{FeNi}]_5/\text{Cu}/[\text{FeNi}/\text{Cu}]_5$ многослойным чувствительным элементом, адаптированным для исследований феррогелей. Измерения ГМИ в исходном состоянии и в присутствии феррогеля с различными концентрациями магнитных наночастиц позволили характеризовать поля рассеяния этих наночастиц в матрице феррогеля. Описание с помощью предложенной электродинамической модели удовлетворительно согласуется с экспериментальными данными, полученными для ГМИ многослойного элемента со слоем феррогеля.

Работа была поддержана Российским научным фондом (проект № 18-19-00090).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Baselt D.R., Lee G.U., Natesan M. et al.* // Biosens. Bioelectron. 1998. V. 13. P. 731.
2. *Besse P.A., Boero G., Demierre M. et al.* // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 80. P. 4199.
3. *Makhotkin V.E., Shurukhin B.P., Lopatin et al.* // Sens. Actuators A. 1991. V. 21. P. 759.
4. *Beach R.S., Berkowitz A.E.* // J. Appl. Phys. 1994. V. 76. P. 6209.
5. *Blyakhman F.A., Safronov A.P., Zubarev A.Yu. et al.* // Results Phys. 2017. V. 7. P. 3624.
6. *Kurlyandskaya G.V., de Cos D., Volchkov S.O.* // Russ. J. Nondestr. Test. 2009. V. 45. P. 377.
7. *Blyakhman F.A., Buznikov N.A., Sklyar T.F. et al.* // Sensors. 2018. V. 18. P. 872.