非磁性细微颗粒的负磁泳耦合分选规律研究

卓秋屹, 王瑞金*, 杜加友, 朱泽飞

杭州电子科技大学机械工程学院, 杭州 310018

* E-mail: wangrj@hdu.edu.cn

收稿日期: 2018-09-22; 接受日期: 2018-12-29; 网络版发表日期: 2019-02-28

国家自然科学基金(批准号: 11572107, 51376055)资助项目

摘要 非磁性细微颗粒的磁泳分离在生物工程、材料工程和环境工程等领域具有广阔的应用前景. 为了分选直径非常接近的非磁性微粒, 设计了负磁泳耦合的水动力分选器, 为了确保分选器具有优异的性能, 数值研究了在不同的磁场强度、磁铁个数、微通道参数、入口流速和速度比时, 3, 4, 5 μm 的3种非磁性颗粒的运动轨迹, 计算3种颗粒侧向偏移和颗粒分布带之间的距离(即带间距). 结果表明: 3种细微颗粒的侧向偏移距离和带间距都随磁场强度和颗粒尺寸的增大而增大; 但是颗粒的侧向偏移并不会因为磁铁数量的增加而持续增加; 颗粒的分离效果随着入口流速的减小, 流速比的增大而提高. 此外, 当微通道结构参数 H_a/H_b 越小, 不同颗粒分布带之间的距离就越大, 不同直径的颗粒就越容易分离; 最后, 利用微-PIV实验获得了3种颗粒带的分布, 并计算颗粒分布带宽和带间距, 与数值模拟结果比较发现一致性很好. 研究结果对非磁性颗粒分选器的设计具有指导意义.

关键词 非磁性颗粒, 负磁泳耦合分选, 侧向偏移, 带间距, 数值模拟

1 引言

利用微通道分选悬浮在液体中的非磁性颗粒, 在肿瘤学、干细胞研究和基因测序等领域有着很好的应用前景^[1-4]. 为了分选出尺寸十分接近的细微颗粒, 人们开始探索各种方法来加大颗粒在微通道中的侧向偏移, 除了利用弯曲通道或收缩扩张通道外^[5-8], 还可以利用各种外力, 进而产生了声泳^[9]、热泳^[10]、介电泳^[11]、光泳^[12]等颗粒分离方法.

磁泳是指黏性介质中的磁性粒子在外加磁场作用下的运动^[13,14]. 非磁性或抗磁性材料颗粒在黏性介质中受到与磁场梯度相反的磁浮力称为负磁泳^[15-17]. 产

生负磁泳力的大小与非磁性颗粒的体积及磁场梯度有关, 颗粒体积与磁场梯度越大, 负磁泳力就越大. 值得注意的是, 产生负磁泳的先决条件是颗粒的导磁率必须比载流液体(前述的黏性液体)低, 这时磁浮力的大小不但与磁场的梯度及颗粒的体积有关, 还与载流液体及非磁性颗粒的磁化强度有关^[18-20]. 与磁泳分离相比负磁泳分离的最大优点是, 可以不用对非磁性颗粒进行磁标记就可以进行分选, 从而免去了磁标记的繁琐步骤, 大大提高了工作效率.

近年来非磁性颗粒的负磁泳分离相关的研究逐渐增多, 如Xuan课题组^[21,22]研究了被动惯性聚焦和主动磁迁移相结合的反磁性颗粒的分离方法, 在不同流率

引用格式: 卓秋屹, 王瑞金, 杜加友, 等. 非磁性细微颗粒的负磁泳耦合分选规律研究. 中国科学: 技术科学, Zhuo Q Y, Wang R J, Du J Y, et al. Investigation on the sorting regularity for non-magnetic micro-particles by negative magnetophoretic coupled sorter (in Chinese). Sci Sin Tech, doi: 10.1360/N092018-00325

和磁流体浓度下数值模拟结果与试验结果吻合得很好。由于聚苯乙烯颗粒经常用于粒子图像测速(particle image velocimetry, PIV)实验中, 课题组还研究在不同颗粒尺寸、 MnCl_2 浓度、流动速度下, 聚苯乙烯颗粒在矩形微通道中偏移^[23]。Hejazian和Nguyen^[24]研究了不同磁场强度、鞘流率(即入口流速比)和颗粒尺寸下, 反磁性颗粒在非均匀磁场作用下的迁移。此外, Fateen和Magdy^[25]建立了基于有限元的包括磁场、流场和颗粒运动方程三个模块的负磁泳分选模型, 并用这种模型研究了负磁泳分离规律。Kumar和Rezai^[26]设计了一款耦合磁泳效应的惯性微分选器, 通过流速比和磁场强度的协调配合, 可以高效分离多种尺寸的颗粒。Mao课题组^[20,27]用非磁性颗粒在磁流体中输运的三维模型, 研究了不同流率、磁流体性质和几何参数下颗粒运动轨迹。Yan等人^[28]设计了一个磁泳辅助的水泳颗粒聚集器, 并研究流率、颗粒尺寸、导磁率和磁场强度对聚集效率的影响。Das等人^[29]用磁水动力学和磁泳相结合的颗粒输运机制, 计算了颗粒运动轨迹。

为了分析尺寸十分接近的非磁性微粒在分选器中的运动和分离, 建立非磁性颗粒负磁泳分离的物理模型, 用数值模拟的方法分析磁场强度、磁场分布、磁铁数量、微通道结构、入口流速和入口流速比对颗粒分选效果的影响规律, 并用相应的实验进行验证, 为非磁性细微颗粒的负磁泳分选器设计服务。

2 负磁泳分选器

2.1 负磁泳原理

磁泳是指在磁场诱导作用下颗粒在流体内的定向移动, 根据所受磁浮力(或称磁泳力)方向可分磁泳和负磁泳两种。其中, 负磁泳是指非磁性或抗磁性颗粒产生与磁场梯度相反的一种运动^[16]。无论磁泳还是负磁泳, 其磁浮力均可表达为^[30]

$$F_m = \mu_0 V_p [(M_p - M_f) \cdot \nabla] H, \quad (1)$$

式中, M_p , M_f 分别为颗粒和载流液体的磁化强度, V_p 为颗粒体积, H 为磁场强度, μ_0 为真空磁导率。由式(1)可知, 颗粒受到的磁泳力的大小和方向, 不但与磁场梯度大小、颗粒体积成正比, 还与颗粒材料和流体材料的磁化强度差成正比。当颗粒材料的磁化强度大于载流液体时, 磁泳力的方向与磁场梯度方向相同, 反之, 当

颗粒材料的磁化强度小于载流液体时, 磁泳力的方向与磁场梯度方向相反, 即负磁泳(如图1(c)和(e))。

2.2 非磁性颗粒的受力

影响非磁性颗粒在流体中的受力和运动的因素很多, 有流体性质和流场分布、颗粒材料和颗粒尺寸、外磁场大小和分布等。非磁性颗粒在液体中将受到流体的黏性阻力、重力与浮力、附加质量力、压强梯度力、Magnus升力、Saffman升力、Basset力、布朗力、热泳力等, 根据相关文献分析^[10], 当颗粒尺寸在1~5 μm 时, 需要考虑的主要是磁场力和黏性力, 其他力都比其小2~3个数量级, 可以忽略。

根据斯托克斯公式黏性力可以表达为

$$F_D = -6\pi\mu r_p(u_p - u_f)f_D, \quad (2)$$

式中, μ 为流体动力黏度, r_p 为颗粒半径, u_p 和 u_f 分别为颗粒和流体速度, f_D 为阻力系数。

2.3 负磁泳耦合分选器

负磁泳耦合分选器可分成入口区、分离区和扩张区(图2(a))。入口A导入含备选颗粒的样品液, 而入口B导入缓冲液, 两个入口尺寸均为500 μm , 缓冲液采用1%体积比的 Fe_3O_4 纳米磁性流体。分离区由微通道和若干永磁铁组成, 微通道结构(宽度 $H_b=500 \mu\text{m}$)和尺寸见图2(b)。微通道的宽度有3个收缩区(收缩通道尺寸 H_a), 由此产生3个微腔(micro-orifices), 每个腔内都会产生一个微涡(micro-vortex), 使大尺寸的颗粒容易产生跨流线运动^[5-8]。另外通道的收缩与扩展, 使得流线弯曲, 从而产生迪恩涡(Dean vortex), 有利于颗粒的分

图1 颗粒的磁泳分离原理图。(a) $M_{p1} \geq M_{p2} \geq M_f$, $V_{p1} = V_{p2}$; (b) $M_{p1} \geq M_f \geq M_{p2}$, $V_{p1} = V_{p2}$; (c) $M_f \geq M_{p2} \geq M_{p1}$, $V_{p1} = V_{p2}$; (d) $M_{p1} = M_{p2} \geq M_f$, $V_{p1} \geq V_{p2}$; (e) $M_{p1} = M_{p2} \leq M_f$, $V_{p1} \geq V_{p2}$

图2 (网络版彩图)负磁泳分选器构成(a)和尺寸(b)

选. 最后, 为了能顺利将聚焦在不同平衡位置的不同尺寸的颗粒从不同的出口导出, 将微通道的宽度放大, 以增大不同颗粒带之间的距离.

3 数值计算模型

为了探索不同因素对非磁性颗粒负磁泳耦合分选的影响规律, 采用数值模拟的手段对磁场的分布、流体的流动以及颗粒的运动进行计算, 为此需建立包含流场计算、磁场计算和颗粒轨迹计算3个模块的数值计算模型.

3.1 流场计算模型

在不考虑外界温度变化情况下, 微通道内流场计算方程组由质量守恒方程和动量守恒方程组成. 对于定常流动质量守恒方程为

$$\nabla \cdot u_f = 0, \quad (3)$$

式中, u_f 为流体流动速度. 对于微通道内液体的流动, 动量守恒方程可以写为

$$\rho_f \left[\frac{\partial u_f}{\partial t} + (u_f \cdot \nabla) u_f \right] = -\nabla p + \mu \nabla^2 u_f + F, \quad (4)$$

式中, ρ_f 是流体密度, p 为压力, F 为源项, 主要考虑磁场力.

由于磁性纳米流体的黏度是随纳米颗粒浓度、外磁场强度等变化而变化的^[31], 对体积分数等于1%的磁流体而言, 黏度随外场的增加基本上是线性的, 可以拟合得到关系式^[31,32]:

$$\mu = \mu_b [1 + 2.5\phi + (1.2\phi + 0.31\phi^2)H/26.8], \quad (5)$$

其中, μ_b 为纳米流体基液的黏度, ϕ 为纳米颗粒体积分数.

3.2 磁场计算模型

在动量守恒方程(4)中的源项主要考虑磁场力, 即 $F = F_m$. 为了能够根据式(1)计算颗粒所受的磁浮力, 需要计算微通道内的磁场强度和流体的磁感应强度, 根据Maxwell方程组有^[33]

$$\nabla \times H = 0, \quad (6)$$

$$\nabla \cdot B = 0, \quad (7)$$

$$B = \mu_0(M_f + H), \quad (8)$$

式中, B 为磁感应强度, M_f 为磁流体的磁化强度. 然而, 磁流体磁化强度的计算相当麻烦, 根据磁化曲线磁流体磁化强度可以通过郎之万函数(Langevin function)来表示和计算^[34], 即

$$M = \alpha \arctan(\beta H), \quad (9)$$

式中, α , β 为磁流体磁化曲线的曲线参数, 可以根据实验得到的磁化曲线来确定.

3.3 颗粒轨迹计算

非磁性颗粒在磁流体中的受力主要考虑磁浮力和黏性阻力, 则根据牛顿第二定律有

$$m_p \frac{du_p}{dt} = F_m + F_D, \quad (10)$$

式中, m_p , u_p 分别为颗粒质量和颗粒运动速度. 由于分选颗粒运动速度变化不大, 而且磁流体的流动速度波动也不大, 所以忽略式(10)的惯性项, 简化方程(10)的求解, 代入式(2)后可以得到非磁性颗粒的运动方程:

$$u_{p,x} = u_{f,x} - \frac{V\mu_0}{6\pi\eta r_p} \cdot \left(M_x \frac{\partial H_x}{\partial x} + M_y \frac{\partial H_x}{\partial y} \right), \quad (11a)$$

$$u_{p,y} = u_{f,y} - \frac{V\mu_0}{6\pi\eta r_p} \cdot \left(M_x \frac{\partial H_y}{\partial x} + M_y \frac{\partial H_y}{\partial y} \right), \quad (11b)$$

式中, $u_{p,x}$ 和 $u_{p,y}$ 分别表示非磁性颗粒在主流方向(x)和侧向(y)的速度分量; $u_{f,x}$ 和 $u_{f,y}$ 表示磁性液体在主流方向和侧向的速度分量, 而 H_x , H_y , M_x , M_y 分别为磁场强度和磁化强度在主流方向和侧向的分量.

3.4 试算与验证

在试算前设置好各种参数(表1). 模拟在COMSOL多物理场仿真商业软件上进行, 采用了静磁场、稀释物质流、流动粒子追踪3个模型耦合. 对磁场与流场进行稳态计算, 对粒子追踪进行瞬态计算. 但其中磁场与流场和颗粒运动之间的数据传递和后处理等, 自编了相应的小程序.

(1) 磁场计算

为了简化计算, 本文针对直通道边放置3个方形永磁铁为例进行计算. 为了获得较高的磁场强度, 采用基泰尔畴^[16], 根据方程(6)~(9)采用有限元计算叠加磁场(图3). 由图可见NSN排列的永磁铁, 在磁铁交界处有较强的磁场, 而永磁铁内部的磁通密度最大. 图4为 $y=-200\text{ }\mu\text{m}$ 处的磁场强度, 可以看出在 $x=2000\sim 2500\text{ }\mu\text{m}$ 间, 无论是 x 方向还是 y 方向磁场梯度都很大, 这样验证了基泰尔畴可以得到高的磁场梯度.

为了验证以上模拟时网格划分的合理性, 进行了网格独立性验证. 对于直通道分选器的入口A、入口B的初始速度分别为 800 和 $200\text{ }\mu\text{m/s}$, 磁场强度为 $0.95\times 10^5\text{ A/m}$ 的情况, 分别对网格数为 64920 , 134041 和 263639 算例进行计算. 比较不同网格数对在通道中央的 $4\text{ }\mu\text{m}$ 颗粒 F_y 方向的受力, 如图5所示. 网格数为 64920 和 134041 时计算得到的磁力偏差为 0.047% , 而网格数为 64920 和 263639 时则为 0.068% , 为了综合考虑计算精度和计算效率, 选择 64920 网格.

表1 计算参数

参数	符号	数值
真空中的磁导率	μ_0	$4\pi\times 10^{-7}\text{ H/m}$
磁流体的载液黏度	μ_f	$1.029\text{ mPa}\cdot\text{s}$
磁流体的颗粒体积分数	ϕ	1%
磁流体饱和磁化强度	M_f	$2.2\times 10^5\text{ A/m}$
磁流体的密度	ρ_f	1133 kg/m^3
颗粒密度	ρ_p	1058 kg/m^3
永磁体剩余磁化强度	M_s	$1.5\times 10^5\text{ A/m}$
颗粒磁化系数	M_p	0

图3 磁通密度云图

图4 磁场强度分布图

图5 网格独立性验证

(2) 流场计算

用流体力学方程式(4)和(5)可以计算微通道内的流场, 设定入口A和入口B速度分别为 200 和 $800\text{ }\mu\text{m/s}$,

入口的流速比为4, 永磁体的最大磁场强度为 0.95×10^5 A/m. 从图6可见, 磁场对通道内磁流体的流动有一定的影响, 这是由于磁场的作用使通道内磁流体的黏度发生了变化, 动量守恒方程中源项也产生变化, 从而使流线产生波动.

(3) 颗粒受力与运动轨迹

在非磁性颗粒的负磁泳分选过程中, 颗粒所受的磁场力和黏性力是占主导的, 也是影响颗粒分选的主要因素. 为了分析非磁性颗粒在外部磁场作用下的受力情况, 根据式(6)~(8)计算了直径为3, 4和5 μm 三种非磁性颗粒在外磁场作用下的受力, 其中入口A流速 $U_A=200$ $\mu\text{m/s}$, 入口B流速 $U_B=800$ $\mu\text{m/s}$, 流速比为4, 磁场强度 0.95×10^5 A/m, 计算结果如图7. 图7(a)为 $y=0$ 处不同大小颗粒受到的磁场力. 显然, 5 μm 颗粒的侧向受力(F_y)比4 μm 颗粒要大, 比3 μm 颗粒则大得更多. 从图7(b)可以看出, 侧向受力(F_y)明显大于主流方向的受力(F_x), 有利于颗粒产生侧向偏移. 另外, 图7(c)中5 μm 颗粒在不同的位置($y=-200$, 0, 200 μm)所受磁力 F_y 的大小有明显的差异, 靠近下侧通道壁颗粒($y=-200$ μm)受到较大的力. 因此, 为了充分利用磁力对颗粒的分离作用, 应尽可能使颗粒沿着通道下侧进入分离区, 这也是

图6 通道内流场速度

加大鞘流率(入口速度比)和采用收缩-扩张型通道能提高分离效率的重要原因.

图8(a)为3, 4, 5 μm 三种颗粒在磁场作用下的迹线, 从图可见5 μm 颗粒(棕色)的侧向偏移最大, 3 μm 颗粒(深蓝)的侧向偏移最小, 这与前面侧向受力的分析结果一致, 说明侧向受力 F_y 对侧向偏移有决定性的作用.

3.5 磁极分布对侧向偏移的影响

由于不同磁极分布方式会产生不同的磁场梯度, 从而改变颗粒的受力状况, 最后影响分选效果. 为此, 针对NSN和NNN两种磁极分布方式, 计算磁场对3, 4,

图7 非磁性颗粒的受力. (a) 颗粒大小对 F_y 的影响; (b) F_y 和 F_x 的比较; (c) 不同位置颗粒的 F_y

图8 磁极NSN(a)和NNN(b)排布下的颗粒迹线图. 棕色—5 μm 、绿色—4 μm 、深蓝—3 μm

5 μm 颗粒轨迹的影响, 参数设置为: $U_A=200 \mu\text{m/s}$, $U_B=800 \mu\text{m/s}$, 入口流速比为4, 磁场强度 $0.95 \times 10^5 \text{ A/m}$. 如图8(a)和(b)分别是磁极在NSN和NNN排布时3, 4, 5 μm 颗粒轨迹, 从图可见, NSN排布的对颗粒的分选效果比NNN的侧向偏移明显要大, 原因是NSN排布下能获得更大的磁场梯度.

3.6 永磁铁对颗粒侧向偏移的影响

永磁铁的位置和数量对颗粒侧向偏移有明显影响. 永磁铁在通道下壁面附近依次排列, 但是如果磁铁的位置过于靠近入口, 颗粒侧向偏移普遍过大, 颗粒容易黏附在上壁面, 并且磁场强度的可变范围也特别小, 因为磁场强度过大了很容易使颗粒到达顶部壁面; 反之, 如果特别靠近出口, 由于对颗粒受磁场作用后的侧向偏移普遍较小, 不利于颗粒的分选. 经过试算, 将永磁铁放在入口汇合点后 $x=1200 \sim 3200 \mu\text{m}$ 的位置.

固定永磁铁位置不变, 磁极排布为NSN排布, $U_A=200 \mu\text{m/s}$, $U_B=800 \mu\text{m/s}$, 流速比为4, 磁场强度为 $0.95 \times 10^5 \text{ A/m}$, 只改变磁铁的数量, 计算了3, 4, 5 μm 颗粒的侧向偏移(如图9), 发现3个永磁铁时颗粒的侧向偏移达到最大值, 原因是: 如果排布4个磁铁, 在第4个磁铁附近的颗粒已经远离磁场梯度最大的区域, 颗粒受到的磁场力 F_y 趋小(图7(a)), 对颗粒侧向偏移的增大作用减弱, 反而受到的黏性力相对增大, 颗粒的侧向偏移会有所减小. 对于大颗粒(5 μm)这种趋势比小颗粒(3 μm)更加明显, 所以随磁铁数的增加, 大颗粒的侧向偏移会明显减小, 而小颗粒则不明显.

图9 不同磁铁数时不同颗粒的侧向偏移距离

3.7 磁场强度对颗粒分离效果的影响

根据前面的分析可知, 非磁性颗粒在磁性液体中的平衡位置是由磁力和黏性力共同决定的. 磁力的大小与非磁性颗粒的分离效果直接相关. 为此, 在流速、流速比、磁铁数量相同时, 数值模拟不同磁场强度下($0.5 \times 10^5 \sim 1.1 \times 10^5 \text{ A/m}$), 3, 4和5 μm 三种非磁性颗粒在扩张区的分布. 从图10可见, 颗粒的侧向偏移随磁场强度的增大而增大, 但是偏移的增大量对不同粒径的颗粒是不同的, 颗粒粒径越大, 侧向偏移的增大量越大, 这正是负磁泳能对不同尺寸非磁性颗粒进行有效分离的原因. 但是, 磁场强度越大, 要求永磁铁越大, 受到分选芯片尺寸的限制, 从图10磁场强度 $0.7 \times 10^5 \text{ A/m}$ 以上时, 3种颗粒已经能顺利分开, 是较为合适的磁场强度.

图10 磁场强度对颗粒分布的影响

3.8 入口流速对分选效果的影响

颗粒的侧向偏移由颗粒受力和力的作用时间决定, 所以入口流速将对颗粒在负磁泳分选时的侧向偏移产生重要影响. 为此对磁场强度 0.7×10^5 A/m, 入口流速比为1, 入口流速为1~24 mm/s条件下3, 4和5 μm 三种颗粒的运动进行模拟, 并计算各自的颗粒偏移. 图11为不同粒径颗粒在不同入口流速下非磁性颗粒的颗粒偏移情况. 从图可见, 对于同一种颗粒的侧向偏移随着入口流速的减小而明显增大, 因为当流速小时, 颗粒停留在磁场作用区域的时间长, 颗粒受到磁场力作用的时间也长, 产生侧向偏移就大. 对于不同直径颗粒来说, 在同一流速下, 粒径大的颗粒侧向偏移也大, 因为颗粒所受磁力的大小与粒径的三次方成正比, 而黏性力则与粒径一次方成正比, 二者综合.

3.9 入口流速比对分选效果的影响

由于颗粒在通道入口初始位置存在较大的分散性, 而鞘流(sheath flow)能有效减小颗粒的分散性^[35,36], 也即压缩颗粒分布带宽, 在磁泳分离中也可以使用鞘流^[37]. 非磁性颗粒分布带由于受到鞘流的限制, 在进入分离通道时聚集在微通道靠近磁铁的一侧, 可以有效提高分离效率, 因为靠近磁铁一侧存在最大的磁场梯度, 在其他条件相同的情况下, 受到更大的磁力 F_y (图7(c)). 颗粒分布带的带宽取决于流速比, 流速比越大, 颗粒分布带宽就越窄, 因此可以通过改变入口流速比来调节颗粒分布带宽, 以提高分离效率. 保持主通道流速(两个入口流速之和) $U_A + U_B = 1.2$ mm/s, 改变入口的速度比1~10, 计算经过分离区后颗粒分布的带宽(图

12). 从图12可以看出, 随着流速比的增大, 3种颗粒的带宽在逐渐减小, 带宽之间的距离也在增大, 有利于颗粒分离. 但流速比超过7后, 这种趋势逐渐变小, 而当流速比小于2时则不能完全分开, 由图可见流速比为4~7是可选范围, 但如果考虑到磁泳分选生产率, 流速比选择4比较合理, 因为此时入口A样品液的流量是最大的.

3.10 微通道的结构对颗粒分离的影响

对于直分离通道而言, 只考虑了磁场力和黏性力对颗粒运动的影响. 为了进一步提高分选效果, 可以采用收缩-扩张通道, 将负磁泳分选与惯性分选耦合在一起. 为了探索收缩-扩张通道对分选效率的影响, 通过改变收缩-扩张比($H_a/H_b = 0.6, 0.5, 0.4$)改变3, 4和5 μm 三种非磁性颗粒侧向偏移, 表2为3种颗粒的带宽和带间距. 其中, 收缩-扩张区的尺寸固定为 $L_a = 500$ μm , $L_b = 1000$ μm , $H_b = 500$ μm , $U_A + U_B = 1.2$ mm/s, 入口流速比为4. 从表2可见, 3种颗粒的分布带宽随磁场强度和收缩-扩张比的变化不大, 但磁场强度对带间距的影响却比较大.

另外, 固定磁场强度 $H = 0.7 \times 10^5$ A/m, 比较收缩-扩张比为1.0, 0.6, 0.5, 0.4时的带宽和带间距(表3), 从表3可见, 收缩-扩张比减小, 带间距明显增大, 其原因有: (1) 通道的收缩将颗粒带进一步压缩到离永磁铁更近的位置, 因此磁力 F_y 比较大; (2) 惯性效应驱使较大的颗粒容易产生跨流线的运动, 从而加大了大颗粒的侧向偏移. 如果不考虑通道压降, 收缩-扩张比越小越好, 但综合起来考虑, 收缩-扩张比为0.5时较为合理.

图 11 (网络版彩图)入口速度与颗粒的侧向偏移的关系

图 12 (网络版彩图)不同流速比下的颗粒分布图

表 2 不同参数下颗粒分布带宽和带间距

收缩- 扩张比	磁场 强度	3 μm 带宽	4 μm 带宽	5 μm 带宽	3~4 μm 带间距	4~5 μm 带间距
$H_a/H_b=0.4$	0.50	157	123	156	55	104
	0.54	160	123	151	74	144
	0.58	159	128	147	83	177
	0.62	151	132	168	85	194
	0.66	149	137	233	111	228
	0.70	144	134	238	127	278
	0.74	139	147	283	155	374
$H_a/H_b=0.5$	0.50	145	138	135	49	92
	0.54	147	138	136	53	106
	0.58	147	134	149	68	126
	0.62	148	129	158	83	142
	0.66	148	127	160	96	176
	0.70	148	124	160	108	205
	0.74	148	119	188	121	246
$H_a/H_b=0.6$	0.50	150	129	121	33	67
	0.54	150	126	124	47	80
	0.58	149	120	128	60	99
	0.62	146	115	134	74	120
	0.66	142	114	134	86	142
	0.70	140	114	131	96	167
	0.74	135	117	126	105	190

表 3 不同收缩-扩张比下颗粒分布带宽和带间距

收缩-扩张比	3 μm 带宽	4 μm 带宽	5 μm 带宽	3~4 μm 带间距	4~5 μm 带间距
$H_a/H_b=1$	131	99	101	54	76
$H_a/H_b=0.6$	140	114	131	96	167
$H_a/H_b=0.5$	148	124	160	108	205
$H_a/H_b=0.4$	144	134	238	127	278

4 实验验证

4.1 非磁性颗粒制备

为了验证数值模拟结果, 用溶胶-凝胶法制备3种 Fe_3O_4 亚微米磁性颗粒(图13), 透射电子显微镜(Titan™ G2 60-300)测得平均粒径765, 988, 1235 nm, 然后进行荧光包裹, 得到平均粒径2880, 3775, 5085 nm的3种颗粒(Microtrac S3500). 用振动样品磁强计(VSM-350)测量其磁化强度分别为28, 12, 0 Gs, 磁化强度数值很小,

图 13 Fe_3O_4 亚微米磁性颗粒的TEM图像

可以认为是非磁性颗粒.

4.2 实验系统

搭建了Dantec Micro-PIV为核心的实验系统(图14), 系统由4大模块组成: 激光系统模块、图像放大和摄像模块、图像后处理模块、微流控系统模块. 具体信息如下:

(1) 激光系统模块主要由激光器、电源和同步器组成, 其中激光器的型号为LAS036, 最大能量为400 mJ, 脉冲间隔为4 ns, 波长分别为532 nm; 激光器为ND:YAG;

(2) 图像放大与摄像模块主要由显微镜和高速CCD组成, 显微镜型号为Dentec 80M57, 物镜放大倍数为40倍; 高速CCD的型号为VSC-04253, 像素为2048×1700, 频率为280 MHz, 拍摄时间间隔100 μs ;

(3) 图像后处理模块为Dantec MicroPIV系统自带的Dynamic studio 2015a;

(4) 微流控系统模块主要有集成在苏州汶灏的15通道恒压泵(型号: WH-MPMM-15)的微泵、微阀、压力控制等, 还有根据要求设计的分选芯片, 分选芯片由

图 14 (网络版彩图)激光诱导荧光图像实验装置

苏州汶灏加工制造。

4.3 分选芯片设计与制造

根据实验要求设计了负磁泳分选芯片(图15), 芯片有2个入口分别导入缓冲液和含备选颗粒的样品液, 入口宽度和深度分别为500和300 μm ; 中间是分选通道, 分选通道有2种, 分别为 $H_a/H_b=1$ 和0.5两种, 固定 $H_b=500 \mu\text{m}$; 分选通道边上有钕铁硼永磁铁, 永磁铁的长度根据要求的磁场强度确定。

4.4 实验结果与分析

为了更直观地了解3, 4, 5 μm 颗粒在微通道的运动和分离过程, 分别用数值模拟和实验研究的方法, 分析磁场和分选通道的收缩-扩张比对颗粒分布的影响, 具体参数: $U_A=800 \mu\text{m/s}$, $U_B=200 \mu\text{m/s}$, 磁场强度为 $0.58 \times 10^5 \text{ A/m}$, $H_a/H_b=0.5$ 。结果如图16所示, 从图可见3种颗粒在磁场和收缩-扩张通道的共同作用下逐渐分开, 实验结果可以定性验证数值模拟结果(图16中的5

图 15 负磁泳分选芯片

图 16 三种颗粒的运动轨迹图

个小图)。为了研究磁场强度、收缩-扩张比和流速比3个主要参数对负磁泳分离效果的影响, 也为了定量比较数值模拟结果和实验结果, 做了一系列负磁泳分离3种颗粒的实验, 数值模拟与实验结果的对比可见图17。显然, 磁场强度越大、收缩-扩张比越小和流速比越大, 则分离效果越好。定量分析结果见表4, 从表可知, 实验结果和模拟结果符合得很好, 最大误差在5%以内。需要说明的是, 当 $U_B/U_A=1$ 时由于颗粒带之间有重叠, 所以实验中无法得到颗粒带宽, 也无法得到带间距。

5 结论

本文用多物理场有限元模拟结合Micro-PIV实验的方法, 对磁流体中的非磁性微粒在非均匀磁场下的运动和分布进行了研究, 得出如下结论。

(1) 在外加非均匀的磁场情况下, 随着磁场强度的

图 17 数值模拟结果和实验结果的定性比较。(a) $H=0.5 \times 10^5 \text{ A/m}$, $H=0.7 \times 10^5 \text{ A/m}$, ($H_a/H_b=0.5$, $U_B/U_A=4$, $U_A+U_B=1000 \mu\text{m/s}$); (b) $H_a/H_b=1$, $H_a/H_b=0.5$, ($H=0.5 \times 10^5 \text{ A/m}$, $U_B/U_A=4$, $U_A+U_B=1000 \mu\text{m/s}$); (c) $U_B/U_A=1$, $U_B/U_A=4$, ($H_a/H_b=1$, $H=0.5 \times 10^5 \text{ A/m}$, $U_A+U_B=1000 \mu\text{m/s}$)

表 4 不同条件下3种颗粒的带宽和带间距的结果定量比较

实验条件	方法	3 μm 带宽	4 μm 带宽	5 μm 带宽	3~4 μm 带间距	4~5 μm 带间距
$H=0.5\times 10^5$ A/m, $H_a/H_b=0.5$, $U_B/U_A=4$, $U_A+U_B=1000$ $\mu\text{m/s}$	模拟	145	138	135	49	92
	实验	148	142	136	47	95
	误差(%)	2.07	2.90	0.74	4.08	3.26
$H=0.7\times 10^5$ A/m, $H_a/H_b=0.5$, $U_B/U_A=4$, $U_A+U_B=1000$ $\mu\text{m/s}$	模拟	148	124	160	108	205
	实验	147	128	157	111	201
	误差(%)	0.68	3.22	1.88	2.78	1.95
$H=0.5\times 10^5$ A/m, $H_a/H_b=1$, $U_B/U_A=4$, $U_A+U_B=1000$ $\mu\text{m/s}$	模拟	122	116	114	36	71
	实验	125	118	113	37	68
	误差(%)	1.64	1.72	0.88	2.78	4.17
$H=0.5\times 10^5$ A/m, $H_a/H_b=0.5$, $U_B/U_A=1$, $U_A+U_B=1000$ $\mu\text{m/s}$	模拟	328	294	271	-58	-71

越大非磁性颗粒的侧向偏移距离越大, 并且颗粒尺寸越大颗粒的偏转距离也在越大, 但是考虑实际情况和微通道尺寸, 磁场强度在 0.7×10^5 A/m左右较为合理。

(2) 磁铁的数量和磁极的排布对颗粒的分选有重要影响, 3个磁铁和NSN排布时颗粒分离效果最好。

(3) 非磁性颗粒的分离效果随着入口流速的减小而明显提升, 因为增加了颗粒在磁场作用区域的停留时间, 但是过小的样品液流率不利于生产率。

(4) 为了让颗粒接近磁场通道的一侧, 在不改变主流速度的情况下, 随着流速比的增加, 颗粒的带宽越来

越窄, 带间距也增大, 可以提高颗粒的分选效率, 但入口流速比为4左右最为合理, 因为此时带宽足够小, 带间距足够大, 样品液流率也比较大。

(5) 分选通道采用收缩-扩张形有利于将惯性分选和负磁泳分选耦合, 增大颗粒的侧向迁移距离。收缩-扩张比减小, 颗粒带间距明显增大, 除了耦合了惯性效应外, 通道的收缩将颗粒带进一步压缩到离永磁铁越近的位置, 增大了磁力 F_y ,从而加大大颗粒的侧向偏移距离。考虑到压降采用0.5左右的收缩-扩张比较为合理。

参考文献

1 Danova M, Torchio M, Mazzini G. Isolation of rare circulating tumor cells in cancer patients: Technical aspects and clinical implications. *Expert Rev Mol Diagnostics*, 2011, 11: 473-485

2 Jo K, Chen Y L, de Pablo J J, et al. Elongation and migration of single DNA molecules in microchannels using oscillatory shear flows. *Lab Chip*, 2009, 9: 2348-2355

3 Lee M G, Choi S, Park J K. Inertial separation in a contraction-expansion array microchannel. *J Chromatogr A*, 2011, 1218: 4138-4143

4 Tsai C H, Lin C H, Fu L M, et al. High-performance microfluidic rectifier based on sudden expansion channel with embedded block structure. *Biomicrofluidics*, 2012, 6: 024108

5 Wang R. Hydrodynamic trapping of particles in an expansion-contraction microfluidic device. *Abstract Appl Anal*, 2013, 2013: 1-6

6 Di Carlo D, Irimia D, Tompkins R G, et al. Continuous inertial focusing, ordering, and separation of particles in microchannels. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2007, 104: 18892-18897

7 Xiang N, Chen K, Dai Q, et al. Inertia-induced focusing dynamics of microparticles throughout a curved microfluidic channel. *Microfluid Nanofluid*, 2015, 18: 29-39

8 Zhang J, Li W, Li M, et al. Particle inertial focusing and its mechanism in a serpentine microchannel. *Microfluid Nanofluid*, 2014, 17: 305-316

9 Oberti S, Neild A, Quach R, et al. The use of acoustic radiation forces to position particles within fluid droplets. *Ultrasonics*, 2009, 49: 47-52

10 Wang R, Du J, Guo W, et al. Investigation on the thermophoresis-coupled inertial sorting of submicrometer particles in a microchannel. *Nanoscale*

- [Microsc Thermophys Eng](#), 2016, 20: 51–65
- 11 Zhang C, Khoshmanesh K, Mitchell A, et al. Dielectrophoresis for manipulation of micro/nano particles in microfluidic systems. [Anal Bioanal Chem](#), 2010, 396: 401–420
- 12 Li W K, Soong C Y, Tzeng P Y, et al. Analysis of transition and mobility of microparticle photophoresis with slip-flow Model. [Microfluid Nanofluid](#), 2011, 10: 199–209
- 13 Pamme N, Wilhelm C. Continuous sorting of magnetic cells via on-chip free-flow magnetophoresis. [Lab Chip](#), 2006, 6: 974–980
- 14 吴信宇, 吴慧英, 胡定华. 基于磁力场与速度场协同的高效微通道磁泳分离. [中国科学: 技术科学](#), 2011, 41: 1620–1627
- 15 Schneider T, Karl S, Moore L R, et al. Sequential CD34 cellfractionation by magnetophoresis in a magnetic dipole flow sorter. [Analyst](#), 2010, 135: 62–70
- 16 邓海东, 李海. 磁性液体中非磁性小球与磁性纳米颗粒的相互作用及磁组装. [物理学报](#), 2013, 62: 127501
- 17 Krebs M D, Erb R M, Yellen B B, et al. Formation of ordered cellular structures in suspension via label-free negative magnetophoresis. [Nano Lett](#), 2009, 9: 1812–1817
- 18 Zhu T, Marrero F, Mao L. Continuous separation of non-magnetic particles inside ferrofluids. [Microfluid Nanofluid](#), 2010, 9: 1003–1009
- 19 Zhu T, Lichlyter D J, Haidekker M A, et al. Analytical model of microfluidic transport of non-magnetic particles in ferrofluids under the influence of a permanent magnet. [Microfluid Nanofluid](#), 2011, 10: 1233–1245
- 20 Cheng R, Zhu T, Mao L. Three-dimensional and analytical modeling of microfluidic particle transport in magnetic fluids. [Microfluid Nanofluid](#), 2014, 16: 1143–1154
- 21 Zhou Y, Song L, Yu L, et al. Inertially focused diamagnetic particle separation in ferrofluids. [Microfluid Nanofluid](#), 2017, 21: 14–23
- 22 Liang L, Xuan X. Diamagnetic particle focusing using ferromicrofluidics with a single magnet. [Microfluid Nanofluid](#), 2012, 13: 637–643
- 23 Zeng J, Chen C, Vedantam P, et al. Magnetic concentration of particles and cells in ferrofluid flow through a straight microchannel using attracting magnets. [Microfluid Nanofluid](#), 2013, 15: 49–55
- 24 Hejazian M, Nguyen N T. Negative magnetophoresis in diluted ferrofluid flow. [Lab Chip](#), 2015, 15: 2998–3005
- 25 Fateen S E K, Magdy M. Three dimensional simulation of negative-magnetophoretic filtration of non-magnetic nanoparticles. [Chem Eng Res Des](#), 2015, 95: 69–78
- 26 Kumar V, Rezai P. Multiplex Inertio-Magnetic Fractionation (MIMF) of magnetic and non-magnetic microparticles in a microfluidic device. [Microfluid Nanofluid](#), 2017, 21: 83–98
- 27 Zhu T, Cheng R, Liu Y, et al. Combining positive and negative magnetophoreses to separate particles of different magnetic properties. [Microfluid Nanofluid](#), 2014, 17: 973–982
- 28 Yan S, Zhang J, Chen H, et al. Development of a novel magnetophoresis-assisted hydrophoresis microdevice for rapid particle ordering. [Biomed Microdevices](#), 2016, 18: 54
- 29 Das S, Chakraborty S, Mitra S K. Magnetohydrodynamics in narrow fluidic channels in presence of spatially non-uniform magnetic fields: Framework for combined magnetohydrodynamic and magnetophoretic particle transport. [Microfluid Nanofluid](#), 2012, 13: 799–807
- 30 Sharpe S A. Magnetophoretic cell clarification. Dissertation for Doctoral Degree. Massachusetts: Massachusetts Institute of Technology, 2004
- 31 Ren Z, Han Y, Hong R, et al. On the viscosity of magnetic fluid with low and moderate solid fraction. [Particuology](#), 2008, 6: 191–198
- 32 李强, 宣益民, 王健. 磁流体粘度的实验研究. [工程热物理学报](#), 2005, 26: 859–861
- 33 李德才. 磁性液体理论及应用. 北京: 科学出版社, 2003
- 34 Roth I B. Characterization and use of permanent magnets with extremely strong field gradient. Dissertation for Master Degree. Oslo: University of Oslo, 2009
- 35 Chiu Y J, Cho S H, Mei Z, et al. Universally applicable three-dimensional hydrodynamic microfluidic flow focusing. [Lab Chip](#), 2013, 13: 1803–1809
- 36 Ha B H, Lee K S, Jung J H, et al. Three-dimensional hydrodynamic flow and particle focusing using four vortices Dean flow. [Microfluid Nanofluid](#), 2014, 17: 647–655
- 37 Gossett D R, Weaver W M, Mach A J, et al. Label-free cell separation and sorting in microfluidic systems. [Anal Bioanal Chem](#), 2010, 397: 3249–3267

Investigation on the sorting regularity for non-magnetic micro-particles by negative magnetophoretic coupled sorter

ZHUO QiuYi, WANG RuiJin, DU JiaYou & ZHU ZeFei

School of Mechanical Engineering, Hangzhou Dianzi University, Hangzhou 310018, China

Separation of micro-particle have great potential applications in the fields of bioengineering, material engineering and environment engineering and so on. In order to sort non-magnetic micro-particles with a very close diameter, a negative magnetophoretic coupled sorter is designed on the basis of hydrodynamic sorter. For assuring the excellent sorting performance of designed sorter, numerical simulations for the calculation of distribution of non-magnetic micro-particles with a diameter of 3, 4, 5 μm after separation process were carried out under different magnetic flux densities, at different inlet velocities and velocity ratios of two inlets in the microchannel with different parameters. The numerical results show that, greater lateral deflection of non-magnetic particles can be induced by more powerful magnetic field and bigger particle diameter. However, the deflection doesn't increase with the magnets number continuously. Separation efficiency of non-magnetic particles was increased at lower inlet velocity and greater inlet-velocity ratio. Moreover, the smaller H_a/H_b can lead to greater space between two particle-bands for facility separation. Finally, the micro-PIV experiments were conducted to calculate the bandwidth and space of particle-band. The agreements of experimental and numerical results verify the validity of our numerical approach. It is instructive to guide the design of non-magnetic sorter.

non-magnetic particles, negative magnetophoretic coupled sorting, lateral deflection, space of particle band, numerical simulation

doi: [10.1360/N092018-00325](https://doi.org/10.1360/N092018-00325)