ORSAY
No d'ordre:

#### UNIVERSITE PARIS 11 - ORSAY

### **THÈSE**

Pour obtenir le grade de

### Docteur de l'Université Paris 11

École doctorale : Ondes et Matière

présentée par

### Mariela RODRIGUEZ-OTAZO

Sujet:

# Réalisation de pinces optiques pour la manipulation de nano et micro objets individuels d'intérêt chimique ou biologique

Soutenue le 11 Juillet 2008 devant le jury composé de :

M. Angel AUGIER-CALDERIN

: Codirecteur de thèse

M. Jean-Pierre BOILOT

Rapporteur

Mme. Suzanne FÉRY-FORGUES

Examinatrice

M. Jean-Pierre GALAUP

Directeur de thèse

iii. beam i leite dilliitei

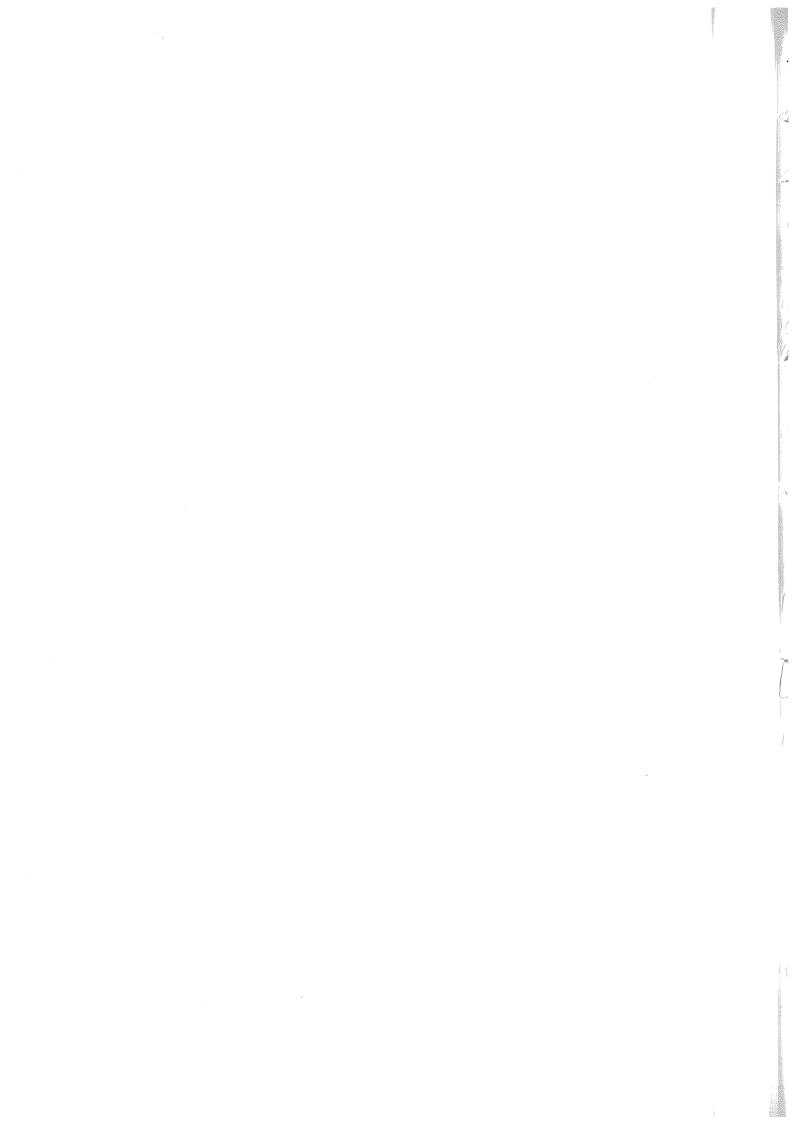
Rapporteur

Mme. Annick WEINER

M. Robert PANSU

Présidente

Laboratoire Aimé Cotton - Campus d'Orsay Bât 505, 91405 Orsay cedex



ORSAY

No d'ordre:

#### UNIVERSITE PARIS 11 - ORSAY

### **THÈSE**

Pour obtenir le grade de

### Docteur de l'Université Paris 11

École doctorale : Ondes et Matière

présentée par

#### Mariela RODRIGUEZ-OTAZO

Sujet:

## Réalisation de pinces optiques pour la manipulation de nano et micro objets individuels d'intérêt chimique ou biologique

Soutenue le 11 Juillet 2008 devant le jury composé de :

M. Angel AUGIER-CALDERIN

: Codirecteur de thèse

M. Jean-Pierre BOILOT

Rapporteur

Mme. Suzanne FÉRY-FORGUES

: Examinatrice

M. Jean-Pierre GALAUP

: Directeur de thèse

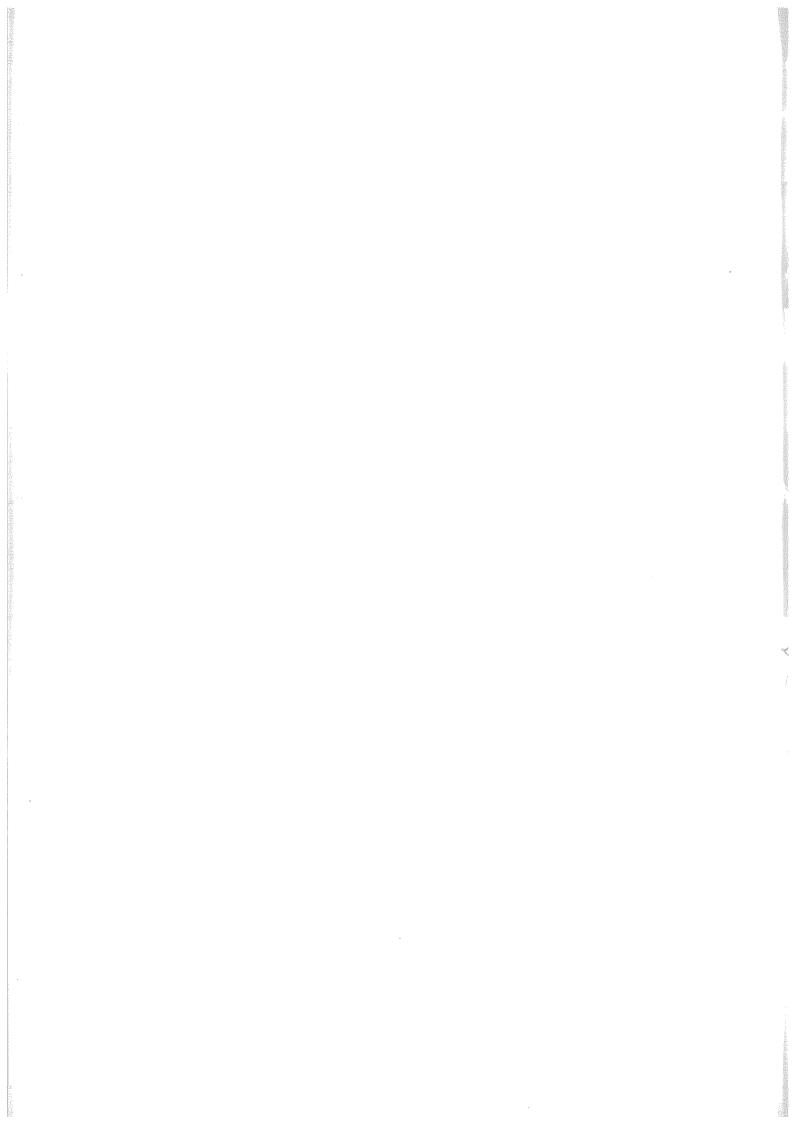
M. Robert PANSU

Rapporteur

Mme. Annick WEINER

Présidente

Laboratoire Aimé Cotton - Campus d'Orsay Bât 505, 91405 Orsay cedex



## Table des matières

Li	ste d $\epsilon$	s tablea	aux	V		
Ta	ıble d	es figur	es	vii		
Re	emerc	iements		xvii		
1.	Intro	duction	n générale	1		
2.	Etat	de l'ar	t des pinces optiques	7		
	2.1			7		
		2.1.1	Existence de la pression de radiation	7		
		2.1.2	Pression de radiation laser	10		
	2.2	Evolut	sion des pinces optiques	14		
	2.3	Travaı	ıx récents en relation avec nos études	22		
		2.3.1	Particules sphériques composites ou hybrides	22		
		2.3.2	Alignement et rotation de micro-cristaux birégringents	24		
3.	Considérations théoriques					
	3.1	Origin	e de la force de capture	29		
	3.2	Partic	ules sphériques homogènes en champ gaussien	30		
		3.2.1	Régime de l'optique géométrique	31		
		3.2.2	Régime de Rayleigh	34		
		3.2.3	Régime de Lorenz-Mie	38		
	3.3	Partic	ules sphériques composites	41		
	3.4	Partic	ules non sphériques	46		
		3.4.1	Cas des cristaux biréfringents	47		
	3.5	Influer	ace des propriétés du champ lumineux	50		
		3.5.1	Particules sphériques dans un champ non gaussien	51		
		3.5.2	Influence de l'état de polarisation de la lumière	52		
		3.5.3	Couple de rotation induit par la lumière	53		
4.	Déve	loppem	ents expérimentaux	59		
	4.1	Descri	ption générale d'un montage de pinces optiques	59		
		4.1.1	Montages avec un seul piège	59		
		412	Montages à nièges multiples	69		

	4.2	Mesur	e de la force optique
		4.2.1	Méthodes pour détecter la position d'une particule 71
			4.2.1.1 Méthodes par imagerie directe
			4.2.1.2 Méthodes sans imagerie
		4.2.2	Méthodes de calibrage de la force d'un piège
		4.2.3	Sélection de la méthode de calibrage
		4.2.4	Programme pour déterminer la constante de force
	4.3	Notre	montage expérimental
		4.3.1	Montage avec un piège optique
		4.3.2	Montage avec deux pièges optiques
		4.3.3	Alignement d'un montage de pinces optiques
	4.4	Prépa	ration des micro-objets étudiés
		4.4.1	Préparation des particules colloïdales de silice
		4.4.2	Préparation de particules colloïdales composites métal-silice 98
		4.4.3	Préparation des microcristaux organiques
	4.5	Autres	s échantillons étudiés
	4.6	es sous microscope	
		4.6.1	Microscope électronique à balayage
		4.6.2	Microscope optique
		4.6.3	Microscope optique polarisant
		4.6.4	Microscope à force atomique
<b>5</b> .	Résu	ıltats, a	nalyses et discussions
	5.1	•	e et calibration du piège sur des billes
		5.1.1	Influence des dimensions et de l'indice des particules
		5.1.2	Détermination de la force optique avec différents détecteurs de po-
			sition
		5.1.3	Force de capture optique sur des systèmes hybrides
		5.1.4	Influence de la profondeur du piège sur la force de capture 133
		5.1.5	Influence de l'état de polarisation de la lumière
		5.1.6	Analyse et discussion des résultats
	5.2	Orient	ation et rotation des micro-cristaux
		5.2.1	Caractéristiques optiques des micro-cristaux
		5.2.2	Orientation des cristaux biréfringents
		5.2.3	Rotation des cristaux biréfringents
		5.2.4	Etude du comportement de la fréquence de rotation pour différents cristaux de type I
			U I

			5.2.4.1	Influence de l'état de polarisation sur la rotation	153
			5.2.4.2	Dépendance de la vitesse de rotation de micro-cristaux de type I avec la puissance	154
			5.2.4.3	Influence des dimensions des cristaux sur la vitesse de rotation	157
			5.2.4.4	Analyse de la diminution de la fréquence de rotation des cristaux	157
		5.2.5		comportement de la fréquence de rotation pour différents de type II	170
		5.2.6	Compara	aison des résultats obtenus pour les deux types de cristaux.	173
		5.2.7	Analyse	et discussion des résultats	174
6.	Autr	es dével	loppemen	ts et perspectives	177
	6.1	Pinces	optiques	femtosecondes	177
	6.2	Contrô	le de l'ori	ientation en 3D de micro-cristaux	179
	6.3	Croissa	ance conti	rôlée de cristaux dans un piège optique	182
	6.4	Contrô	le de bior	noteurs moléculaires	185
7.	Conc	lusion g	générale .		189
An	nexes	3			
A.	Calc	ıl de la	force opt	ique maximale	207
В.	Rapp	els sur	les propri	iétés des cristaux biréfringents	209
C	Sché	mas des	détecteu	rs de position	211

## Liste des tableaux

4.1	Lasers utilisables pour un montage de pinces optiques sous microscope.  L'astérisque (*) identifie les lasers que nous avons utilisés occasionnellement 6	1
4.2	Tableau comparatif des différentes méthodes de calibrages appliquées à des billes de latex de 1 $\mu m$ de diamètre	4
4.3	Tableau comparatif des caractéristiques des deux types de senseurs de position utilisés dans ce travail	9
4.4	Ingrédients utilisés pour la préparation des colloïdes de silice pure 9	7
4.5	Préparation et dimensions des particules de silice colloïdale que nous avons préparées	8
4.6	Préparation des particules colloïdales composites or-silice 9	9
4.7	Caractéristiques principales des micro-cristaux typiques montrés sur la figure 4.25 et dont les formes sont similaires à celles de ceux que nous avons manipulés au cours de notre travail	2
4.8	Caractéristiques principales des billes de latex utilisées dans ce travail. 10	4
5.1	Tableau rapportant les valeurs mesurées pour la constante de raideur d'un piège selon les deux directions latérales $x$ et $y$	1
5.2	Valeurs du coefficient de raideur mesurées pour des billes de latex de 1 µm de diamètre dans différentes conditions expérimentales	2
5.3	Comparaison entre les valeurs obtenues des constantes élastiques avec chaque détecteur de position pour des billes de latex de différentes dimensions	5
5.4	Comparaison entre les valeurs de la constante élastique mesurée pour des colloïdes de silice ou hybrides or-silice de même diamètre moyen 13	0
5.5	Relevé de résultats de mesures de la constante élastique pour différentes particules en fonction de la profondeur du piège et sous une puissance incidente constante de 10 mW	6
5.6	Récapitulatif des positions angulaires de la lame cristalline pour les- quelles la rotation d'un micro-cristal de type I a été observée. Le sens de cette rotation est aussi indiqué	0

5.7	Angles et sens de rotation pour les deux types de cristaux étudiés. Notez	
	les deux comportements différents que nous avons observés pour des	
	cristaux de type II	75

# Table des figures

2.1	Images du traité "De Cometis" publié en 1619. Le livre résume les observations faites sur les comètes par Kepler pendant la période qui va de 1607 à 1618	8
2.2	Page de titre et figures de la seconde édition du livre "Opticks" de Newton publié en 1718.	9
2.3	Le livre de famille des forces optiques : (a) Premières observations de Kepler sur les queues cométaires (environ 1610). (b) Les équations de Maxwell donnent la première description mathématique des forces dues à la lumière (1861). (c) Sir Poynting souligne l'inadéquation des forces lumineuses dans les affaires terrestres. (d) Lebedev réalise la première expérience pour quantifier la pression de radiation (1899). (e) Einstein suggère le mécanisme de génération de lumière par émission stimulée (1916). (f) Gordon Gould et Théodore Maiman construisent indépendamment les premiers lasers (1960). (g) Ashkin développe les premiers pièges optiques en utilisant un seul faisceau laser focalisé (1986)	13
2.4	Création d'un vortex optique avec un hologramme dynamique. La première figure montre la modulation de phase appliquée au faisceau laser, puis la prédiction du profil d'intensité et la distribution de l'intensité mesurée expérimentalement. Les figures suivantes montrent des exemples de modulation de vortex pour différentes valeurs du nombre $m$ de lobes générés pour les figures de Lissajous et de l'amplitude $\alpha$ [48]	16
2.5	A gauche, schéma représentant le principe de la mesure de l'élasticité de la molécule d' $ADN$ . A droite, une molécule d' $ARN$ polymérase est liée à une micro-sphère de latex piégée par une pince optique	17
2.6	Un unique filament d'actine est suspendu entre deux billes de latex maintenues en position par deux pièges optiques. Une molécule de myosine interagit avec le filament le long duquel elle peut se déplacer [58].	18
2.7	Aide à la fertilisation : manipulation de gamètes et de spermatozoïdes [59]. La manipulation optique de cellules mobiles comme les spermatozoïdes pour la mesure de leur force de propulsion flagellaire constitue un outil diagnostique de certaines stérilités	19
2.8	Mesures de propriété visco-élastiques de cellules étirées : un globule avec deux billes en position diamétralement opposée est déformé en augmentant la distance entre les pièges. La variation de diamètre D est mesurée en fonction de la force F	20

2.9	Réalisation de nano-moteurs animés par le faisceau laser d'une pince optique. Le rotor se met à tourner au voisinage du foyer d'un objectif à grande ouverture numérique. Le sens de rotation change selon que le rotor est au dessus ou au dessous du foyer [60]	21
2.10	Guide d'ondes plasmoniques construit à partir de petites billes composites avec un cœur métallique interne [182]	23
3.1	Représentation de la capture d'une bille transparente dans le régime de l'optique géométrique. Dans le diagramme de vecteurs, on a représenté le changement du moment cinétique de la lumière pour le rayon le plus intense	32
3.2	Tracé des rayons selon les lois de l'optique géométrique au travers d'une bille diélectrique homogène transparente.	34
3.3	Courbes des forces de dispersion et de gradient calculées dans la cadre de la théorie généralisée de Lorenz-Mie et de la matrice $T$ . Les calculs ont été faits pour $\lambda = 1,064 \ \mu m$ , des billes dans l'eau $n_m = 1,33$ et un objectif d'ouverture numérique $1,25$ dans le cas de billes de latex de $3,4 \ \mu m$ , $1,1 \ \mu m$ , $100 \ nm$ et d'une bille de silice de $400 \ nm$ de diamètre, présentés dans les graphes dans l'ordre, du haut vers le bas	40
3.4	Tracé des rayons selon les lois de l'optique géométrique au travers d'une bille composite présentant un cœur métallique parfaitement réfléchissant de rayon a en son centre	42
3.5	Graphes représentant l'évolution des efficacités $Q$ de piégeage en fonction de l'angle d'incidence $\theta$ sur une bille de silice pure, de polymère latex, composite métal-silice et composite métal-latex. Les courbes d'efficacité sont respectivement en rouge pour $Q_{grad.}$ , en vert pour $Q_{disp.}$ et en bleu pour $Q_{total}$	43
3.6	Ellipsoïde des indices de réfraction, à gauche pour un cristal uniaxe positif selon $z$ , à droite, pour un cristal uniaxe négatif selon $z$	48
3.7	Changement de la polarisation dû à la biréfringenc pour un faisceau de lumière se propageant de bas en haut le long de l'axe z	49
3.8	Profils spatiaux transversaux de faisceaux LG pour différentes valeurs des indices $l$ et $p$	51
3.9	Calcul des forces latérales respectivement parallèle et perpendiculaire à la polarisation du faisceau incident pour des billes de latex de $0,5,\ 1,0$ et $5,0\ \mu m$ de rayon	53
4.1	Schéma de base d'un montage typique de pinces optiques	60
4.2	Contrôle de la position axiale du piège optique par rapport au plan de l'image. Schéma adapté de la référence [160].	63

4.3	Arrangement des lentilles pour le contrôle adéquat de la position du piège dans le plan de l'échantillon. Schéma adapté de la référence [160]	64
4.4	Rôle de l'ouverture numérique de l'objectif du microscope. Dans l'image (a), on n'utilise pas de liquide adaptateur d'indice et la réfraction après la lame couvre-objet empêche les rayons les plus écartés d'entrer dans l'objectif. La situation est résolue en (b) grâce au liquide adaptateur d'indice	67
4.5	Exemple de montage d'une pince optique holographique permettant la génération dynamique d'hologrammes à l'aide d'un modulateur spatial de lumière.	70
4.6	Schéma d'un montage utilisant le contraste interférentiel différentiel DIC [168]	74
4.7	Schéma décrivant un montage avec le détecteur placé dans le plan focal postérieur de l'objectif [169]	75
4.8	Fréquence de coupure $f_c$ apparaissant dans le spectre du signal associé au mouvement de la particule dans le piège	79
4.9	Ecran intéractif et graphiques de résultats du programme TweezerCalib 2.1	86
4.10	Installation pour le piégeage et la détection de position de particules. Le montage utilise un laser à fibre dopée Ytterbium à 1,064 $\mu$ m	87
4.11	Photographie du laser à fibre dopée Ytterbium de IPG Photonics utilisé dans notre montage	88
4.12	Montage réalisé pour adapter une lame dichroïque sous l'objectif afin de permettre l'introduction du faisceau laser dans le microscope Ellipse 100.	88
4.13	Détails (photographie de gauche) du montage de la lame dichroïque pour renvoyer la lumière diffusée du laser HeNe vers le détecteur de position dans son boîtier (photographie de droite).	90
4.14	Schéma du montage avec deux pièges optiques	91
4.15	Photographie du dispositif avec les cubes polarisants pour l'obtention de deux pièges optiques simultanés	92
4.16	Photographie du montage complet de pinces optiques en cours d'utilisation.	93
4.17	Image de la tache laser telle qu'enregistrée au moment des procédures de réglage du montage	94
4.18	Réaction d'hydrolyse et de condensation : alkulation et oxolation	96

4.19	Particules colloïdales de silice de 400 nm de diamètre. Image obtenue avec le microscope électronique à balayage de l'Ecole Polytechnique 97
4.20	Colloïdes de silice obtenus avec 5 mL et 7 mL de soluté respectivement. 98
4.21	Particules colloïdales de silice de 100 nm de diamètre
4.22	Particules composites or-silice observées au microscope électronique. Images obtenues avec le microscope électronique à balayage du Centre de Micro et Nano Technologies MINERVE de l'Université Paris 11
4.23	Schéma de la structure moléculaire de la molécule NBD-C8 100
4.24	Images en microscopie de fluorescence de grands microcristaux de NBD-C8 obtenus dans l'eau pure à gauche et dans l'eau avec addition à 20 minutes du début du processus de reprécipitation du polymère PAA 5100 g/mol à droite. Images extraites de la thèse de Mouhammad Abyan [189] 101
4.25	Images en microscopie de fluorescence de microcristaux de NBD-C8 obtenus en présence du polymère PAA 5100 g/mol à une concentration de 5,9.10 <sup>-5</sup> M, ajouté au début de la reprécipitation. Images extraites de la thèse de Mouhammad Abyan [189]
4.26	Cristaux en forme de croix observés quelquefois lors de la préparation de cristaux de type I ou II
4.27	Images en microscopie électronique de sphères de latex commerciales. Images obtenues avec le microscope électronique à balayage du Centre de Micro et Nano Technologies MINERVE de l'Université Paris 11
4.28	Photographie du microscope électronique à balayage du Centre MINERVE de l'Université Paris 11 que nous avons utilisé
4.29	Image d'une bille unique de latex vue au microscope électronique à balayage. La barre d'échelle nous permet d'en évaluer le diamètre avec précision à 240 nm
4.30	A gauche, photographie du microscope inversé NIKON Ellipse 100 utilisé pour les expériences de pinces optiques. A droite, photographie du microscope droit LEITZ Orthoplan que nous avons utilisé pour imager les micro-cristaux fluorescents, puis modifié pour le transformer en microscope polarisant
4.31	Photographies de micro-cristaux déposés sur la lame porte-échantillon . 107
4.32	Images de taches laser
4.33	Schéma explicatif de l'analyse d'un cristal biréfringent entre polariseurs croisés dans un microscope polarisant

4.34	Formation des images d'interférences entre polariseurs croisés pour un cristal uniaxial et biaxial à gauche. Observation de l'image des isogyres entre polariseurs croisés pour un cristal de quartz $(n_e-n_o=0.009)$ et pour un cristal de calcite $(n_o-n_e=0.172)$ à droite
4.35	Images de cristaux sous microscope entre polariseurs croisés 109
4.36	Observation de la croix noire avec un cristal de calcite placé entre polariseurs croisés. Le cristal est taillé pour que l'axe optique soit perpendiculaire aux faces. La croix noire devient une croix blanche si les axes des polariseurs sont parallèles
4.37	Détails des modifications effectuées pour transformer notre microscope droit en microscope polarisant
4.38	Images de micro-cristaux entre polariseurs croisés obtenues avec notre microscope polarisant. A gauche, les cristaux sont vus en microscopie normale, à droite, entre polariseurs croisés. On notera bien que l'observation de la croix noire coïncide avec une image quasi ponctuelle des cristaux alors que lorsqu'ils sont déposés à plat, ils ont une teinte uniforme
4.39	Photographies du microscope à force atomique NanoSurf easy Scan2 111
4.40	Images de cristaux de type I observés au microscope optique entre po- lariseurs croisés et au microscope à force atomique
4.41	Dimensions de deux des cristaux de la figure précédente mesurées à l'aide du programme NanoSurf easy Scan2 du microscope à force atomique
4.42	Visualisation des irrégularités de surface sur un cristal de NBD-C8 de type I
5.1	Figure de gauche, spectre de puissance du signal de "zéro" mesuré en l'absence de lumière diffusée sur le détecteur de position. Figure de droite, spectre de puissance mesuré en présence de lumière diffusée en l'absence d'une particule dans le piège, courbe plus à gauche, en présence d'une particule dans le piège, courbe plus à droite
5.2	Variation du spectre de puissance en présence d'une particule lorsqu'on augmente la puissance laser incidente. Sur la figure à droite, on présente l'allure correspondante des signaux tels qu'enregistrés par l'oscilloscope. 116
5.3	Courbes de calibrage de la puissance mesurée au point focal après l'objectif en fonction de la puissance délivrée par le laser
5.4	Comportement de la puissance de chacun des faisceaux lasers pour chaque piège, mesurée à la sortie de l'objectif en fonction de l'orientation angulaire du rotateur de polarisation.

5.5	Exemple d'un ajustement des donnees experimentales pour une puissance de $30 \text{ mW}$ du laser de capture avec le programme TweezerCalib $2.1. \dots $
5.6	Courbe expérimentale de la dépendance de la fréquence de coupure en fonction de la puissance à la sortie du laser sur une bille de latex de 1 $\mu m$ de diamètre située à 5 $\mu m$ de profondeur
5.7	Dépendance de la force optique avec la position de la particule dans le piège pour une puissance au foyer de 3,2 mW
5.8	Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance du laser mesurée à la sortie de l'objectif pour des billes de latex de 1,1 $\mu m$ et de 100 $nm$ de diamètre
5.9	Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour des billes de latex de 3,4 µm et de 100 nm de diamètre
5.10	Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour des sphères de latex et de silice de 100 nm de diamètre
5.11	Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance à la sortie de l'objectif pour des sphères de latex de 100 nm de diamètre et de 1,1 $\mu$ m, mesurée avec le PSD à effet latéral et le PSD à 4 quadrants
5.12	Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance du laser me- surée à la sortie de l'objectif pour des sphères de silice et des particules composites or-silice de 100 nm de diamètre
5.13	Comportement de la fréquence de coupure avec l'augmentation de la profondeur du piège pour des billes de latex de 1,1 $\mu m$ de diamètre 133
5.14	Dépendance de la profondeur du piège avec la puissance mesurée à la sortie du laser
5.15	Dépendance de la constante élastique du piège avec la profondeur pour des colloïdes de silice de 400 nm et des particules composites or-silice de 100 nm de diamètre
5.16	Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance à la sortie de l'objectif pour des sphères de latex de 1,1 µm et 3,4 µm de diamètre pour différents états de polarisation de la lumière incidente
5.17	Schéma montrant l'orientation de l'axe optique en fonction des axes du cristal et le positionnement du cristal dans le piège optique
5.18	Images de la croix noire observée pour un cristal dont l'axe optique z est orienté parallèlement à la direction de propagation

5.19	Tableau des teintes de Newton ou table de Michel-Lévy qui permet une évaluation de la biréfringence d'un cristal en fonction de sa teinte entre polariseurs croisés et de la connaissance de son épaisseur	143
5.20	Orientation d'un micro-cristal dans le piège optique observé au micro-scope inversé	144
5.21	Figure du haut, orientation d'un micro-cristal en fonction de l'orientation de la lame retardatrice. Pour une rotation de la lame $\lambda/2$ d'un angle $\theta$ , le cristal tourne d'un angle $2\times\theta$ . Figure du bas, variations de l'image de la tache laser pour les mêmes angles de la lame retardatrice	146
5.22	Alignement d'un micro-cristal biréfringent dont l'axe optique est sup- posé orienté selon la direction de son axe lent, piégé dans un faisceau linéairement polarisé. Ce cas ne correspond pas à celui de nos micro-cristaux dont l'axe optique est orienté selon z!	147
5.23	Schéma montrant des rayons lumineux polarisés linéairement traversant un cristal de forme parallélipipédique. Le cristal est orienté de sorte que son axe long soit vertical	149
5.24	Images de la tache laser pour différentes orientations de la lame cristal- line $3\lambda/4$ aux angles pour lesquels nous avons vu la rotation des micro- cristaux	150
5.25	Fluctuations de la puissance mesurée pour différentes orientations de la lame retardatrice	151
5.26	Histogramme des angles de la lame cristalline $3\lambda/4$ pour lesquels on observe la rotation des cristaux. Le comportement de 8 micro-cristaux de type I a ainsi été étudié	152
5.27	Comportement de la fréquence de rotation avec la puissance pour différents angles de la lame retardatrice. Pour ces mesures, les variations de puissance dues à la rotation de la lame reportées sur la figure 5.25 ont été prises en compte	153
5.28	Signal de rotation d'un cristal à faible puissance. On observe sur la courbe à gauche des temps inégaux entre les pics de signal qui démontrent le caractère saccadé de la rotation avec des durées variables de blocage du micro-cristal dans une orientation donnée avant son basculement dans une autre orientation. Chaque pic correspond au basculement sur un demi-tour du microcristal. Comme visualisé sur la figure de droite, la largeur des pics que l'on associe au temps de basculement dépend de la puissance	154
5.29	Signal de rotation d'un cristal pour une puissance de 120 mW mesurée à la sortie du laser et sa transformée de Fourier.	155

5.30	A gauche, comportement de la vitesse de rotation avec l'augmentation de la puissance incidente. A droite, stabilité de la fréquence de rotation pendant le temps de mesure
5.31	Comportement de la fréquence de rotation pour des cristaux de différentes dimensions de 1 $\mu m$ , 1,5 $\mu m$ et 2 $\mu m$
5.32	Variation de la fréquence de rotation avec l'augmentation monotone de la puissance pour un cristal de type I
5.33	Signal de rotation et sa transformée de Fourier pour différents points de la courbe de la fréquence de rotation en fonction de la puissance 160
5.34	Comportement des quatre pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de la puissance
5.35	Amplitude des pics de la transformée de Fourier
5.36	Rapport des amplitudes des pics 1 et 2 de la transformée de Fourier 162
5.37	Evolution des pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de puissance, indiquée en Watt sur la figure pour chacune des courbes 163
5.38	Schéma montrant la possibilité de mouvements combinés de rotation et de précession du cristal dans le piège optique
5.39	Ajustement du modèle de précession sur les données expérimentales 166
5.40	Ajustement de la courbe expérimentale par une fonction parabolique à courbure négative de la forme $A$ + $B$ . $P$ (1- $\epsilon P$ ) avec $A$ =-20,5, $B$ =13,3 et $\epsilon$ =0,017
5.41	A gauche, comportement de la fréquence de rotation avec l'augmenta- tion de la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour un cristal de type II. A droite, comportement des quatre pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de la puissance
5.42	Amplitude des pics de la transformée de Fourier
5.43	Evolution des pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de la puissance
5.44	Comportement de la fréquence de rotation avec la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour un cristal de type II en forme de croix 172
5.45	Signal de rotation et sa transformée de Fourier pour différents points sélectionnés sur la courbe de la fréquence de rotation en fonction de la puissance pour un cristal de type II en forme de croix
5.46	Histogrammes comparés des positions des angles favorables à la rotation pour des cristaux de tune I et II.

6.1	Particule de latex de 1 µm capturée avec le laser saphir-titane en mode continu à gauche et pulsé a droite. La fluorescence apparaît seulement lorsque le laser fonctionne en régime pulsé femtoseconde
6.2	Observation de la dégradation de fluorescence due aux effets de photo- blanchiment des molécules de colorant à haute puissance moyenne d'ir- radiation
6.3	Transformation d'un modèle pentagonal de sphères de silice à l'aide de pinces optiques holographiques. a- configuration originale de 26 sphères colloïdales de diamètre 1 µm. b- après 16 étapes. c-configuration finale après 38 étapes
6.4	Tentative de faire croître des cristaux de NBD-C8 dans une goutte liquide en présence d'un faisceau laser de piégeage. Au lieu d'un cristal bien formé, les images sous microscope révèlent de jolies arborescences fractales, à gauche en lumière normale, à droite entre polariseurs croisés
6.5	Prototype de cellule pour réaliser la croissance sous pinces optiques de micro-cristaux
6.6	La procédure pour ensemencer une goutte de solution utilise une cuvette de transfert. a- Solution mère et germes sont injectés dans la cuvette. Un faisceau laser sélectionne un germe et le pousse dans la cuvette jusqu'au drain. b- Positionné au dessus du drain, le germe est introduit dans la goutte à ensemencer et le laser est coupé. c- La goutte réceptrice est alors déplacée et le germe unique sélectionné est isolé [203]
6.7	Montage expérimental pour étudier le déplacement de la molécule de myosine le long d'un filament d'actine
6.8	Filaments d'actine observés en microscopie de fluorescence
6.9	Mouvement des filaments d'actine avec l'addition d'ATP
C.1	Schémas comparatifs entre un détecteur à quatre quadrants à gauche et un détecteur à effet latéral à droite
C.2	Schéma d'un détecteur de position à effet latéral montrant le branchement des électrodes
C.3	Schéma d'un détecteur à quatre quadrants où l'on a représenté la position d'un spot laser de rayon R



### Remerciements

L'accomplissement d'un travail de thèse est toujours le résultat de l'aide collective et des contributions multiples de beaucoup de personnes de bonne volonté qui apportent des éléments essentiels pour la réalisation des objectifs primordiaux que l'on s'est fixé. En quelques lignes, je vais essayer d'exprimer en forme résumée mais en espérant n'oublier personne, combien je suis redevable à toutes les personnes qui, sous une forme ou une autre, sont intervenues et m'ont aidé dans la tache bien difficile conduisant à l'obtention d'un titre de docteur.

En tout premier lieu, mes remerciements sont adressés de façon générale à tous les collègues et ami(e)s du laboratoire Aimé Cotton, pour m'avoir apporté les bonnes conditions de travail nécessaires et pour m'avoir si gentiment intégré, au cours du temps, à la vie quotidienne du Laboratoire. En cela, je voudrai exprimer mes meilleurs remerciements à Monsieur le Directeur Pierre Pillet qui, comme principal responsable du Laboratoire, a toujours été derrière toutes les décisions importantes en relation avec mes conditions de séjour et de travail au laboratoire. Qu'il soit aussi remercié pour le soutien constant qu'il m'a accordé afin de me permettre de participer à plusieurs manifestations scientifiques qui m'ont permis ainsi de valoriser mon travail.

Je souhaite remercier Messieurs Robert Pansu, de l'Ecole Normale Supérieure de Cachan et Jean Pierre Boilot, de l'Ecole Polytechnique, pour avoir bien voulu accepter, malgré leur lourde charge, le surcroît de travail occasionné par la lecture attentive de mon manuscrit et la rédaction d'un rapport de thèse. Je leur suis aussi très reconnaissante des suggestions pertinentes qu'ils m'ont fait pour améliorer la présentation de mon travail. Mes remerciements vont aussi à Mme Annick Weiner, vice-présidente de l'Université Paris 11, qui à ce titre, fut dès le tout début à l'origine de la mise en place des accords nécessaires à l'organisation de ma thèse dans le cadre d'une cotutelle et qui s'est toujours occupé du suivi du soutien financier indispensable. Maintenant en cette toute fin de parcours, je la remercie chaleureusement d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse malgré les exigences imposées par ses grandes responsabilités. Enfin, je me dois d'exprimer ma

profonde gratitude à Mme Suzanne Féry-Forgues de l'Université Paul Sabatier à Toulouse pour avoir accepté de juger ce travail, mais aussi pour sa collaboration, ensemble avec Franois Lamère, pour la synthèse et la caractérisation des cristaux organiques que nous avons étudiés sous pinces optiques.

Je suis immensément redevable à l'Ambassade de France à Cuba qui m'a procuré le soutien financier nécessaire pour assurer mes différents séjours en France. Mais aussi à Ariel Felipe qui fut pendant plusieurs années le représentant du Ministère des Sciences de Cuba à l'Ambassade Cuba en France et qui a toujours été très intéressé et très au fait des évolutions de mon travail.

D'autres personnes sont également intervenues directement dans la réalisation du travail comme Daniel Nutarelli, qui avec une grande amabilité m'a enseigné l'utilisation du microscope à force atomique. Beaucoup de mercis aussi à Nouari Kébaïli et à Sakina Benrezzak qui ont, en plus d'une occasion, partagé avec moi leur temps comme utilisateurs du microscope électronique du centre MINERVE avec mes échantillons de travail. Je souhaite remercier aussi Mme Claudia Veigel pour m'avoir accueillie dans son Laboratoire à Londres et pour m'avoir donné l'opportunité d'y effectuer un séjour très fructueux en participant à ses expériences sur les moteurs moléculaires.

Dans ce travail expérimental, il a toujours été d'importance vitale dès le début de pouvoir compter sur un support instrumental dynamique et efficace pour avancer dans la construction de notre expérience. En cela, je voudrai particulièrement remercier la participation des collègues de l'atelier de mécanique du laboratoire et tout spécialement, son chef d'atelier M. Patrice Leroy. Egalement, je ne puis oublier la contribution essentielle de M. René Farcy qui a mis à ma disposition le microscope inversé qui a servi à la plus grande partie des expériences de pinces optiques ainsi que pour le don d'un détecteur de position à effet latéral avec lequel nous avons effectué les premières mesures. De la même façon, je suis redevable à Arnaud Recher pour sa contribution dans la partie électronique et plus généralement au service d'électronique du Laboratoire qui a pu mettre à ma disposition un oscilloscope à hautes performances pour l'enregistrement des données expérimentales.

Un remerciement très chaleureux va à tous mes amis de Cuba, notamment à ceux de mon centre de travail, le CEADEN, pour m'avoir toujours facilité les choses et solutionné les problèmes que pouvaient poser mes voyages et le temps que je devais consacrer à mon doctorat. En particulier, mes pensées vont vers les amis du groupe du "café" où j'ai eu tant de plaisir à échanger mes préoccupations et quelques bonnes idées.

A mes amies d'enfance, Gabriela, Silvia et Lyan pour m'avoir permis d'apprendre qu'ils sont toujours là quand il y a nécessité. A mes nouveaux amis et amies que j'ai connu en France : Pierre et Etienne, toujours de bonne humeur ; Nouari avec lequel j'ai pu parler librement en espagnol au milieu de tant de langues étrangères ; Sylvi toujours souriant ; Jose pour sa disposition permanente à m'aider dans le travail ; Jordi si spirituel et si bon ami ; Aline avec ses bonnes idées pour d'agréables fins de semaine ; Blanca et Beatriz avec lesquelles j'ai partagé de si bons moments qu'ils ont abouti à les convertir en véritables sœurs pour moi.

A tous les participants au "groupe de midi" qui ont partagé avec moi la plupart des repas à la cantine, et ensemble avec eux, mes erreurs dans l'apprentissage de la langue française. Aux étudiants du doctorat en général qui, sans aucun doute, comprennent bien les détails des expériences associées au travail d'un doctorant.

Bien sûr, je ne peux terminer sans remercier les personnes qui au plus près ont partagé ce travail, mon tuteur de Cuba, M. Angel Augier qui a toujours été disponible pour collaborer en tout ce qui fut possible et pour le temps consacré à ce travail au milieu de conditions adverses et pas toujours favorables. Enfin à M. Jean-Pierre Galaup pour l'idée d'initier cet intéressant travail, pour son apprentissage au cours des années passées à travailler ensemble avec lui, pour son aide énorme à la traduction du manuscrit en français, et pour avoir toujours été disponible pour m'aider à ce que mon séjour en France, loin de mon pays, se passe le mieux possible.

Je ne saurais finir sans une pensée à ma famille, et plus particulièrement à ma mère, qui fut mon soutien inconditionnel pour surmonter toutes les vicissitudes qui ont pu surgir au cours de ces années.

## Résumé

Nous avons construit une expérience de pinces optiques basée sur l'utilisation d'un microscope optique inversé. Deux classes de micro objets ont été étudiées : 1 - Des particules colloïdales sphériques ou approximativement sphériques, soit homogènes tels des colloïdes de silice pure élaborés par méthode sol-gel ou des billes commerciales de latex, soit inhomogènes tels des particules composites constituées d'un cœur métallique d'or entouré d'une coquille de silice. 2 - Des micro-monocristaux d'une molécule organique fluorescente présentant une forme non sphérique, parallélépipédique. Notre étude a démontré un piégeage efficace même sur les plus petites particules contenant un noyau d'or. Pour les nanoparticules hybrides d'or-silice, la constante élastique du piège optique expérimentalement mesurée est plus forte que pour les nanoparticules de silice avec un diamètre semblable. Ce résultat est en accord avec un modèle simple fondé sur l'accroissement de la polarisabilité de la particule dû à la présence du noyau d'or. L'influence de la polarisation de la lumière a été étudiée et nous avons discuté le choix du détecteur de position. Les microcristaux organiques s'orientent de sorte que leur axe long soit dans la direction axiale du faisceau de piégeage, l'axe court suit la direction de la polarisation linéaire du faisceau. En polarisation circulaire ou elliptique, les cristaux se mettent spontanément en rotation avec des vitesses de rotation tout à fait élevées, jusqu'à 500 tours par seconde. C'est la première fois qu'un tel résultat est reporté pour des particules de la taille de nos cristaux. Un autre résultat surprenant est que lorsque la puissance incidente augmente, la vitesse de rotation augmente aussi comme attendu mais après passage par un maximum, alors que la puissance continue de croître, la vitesse de rotation diminue jusqu'à arrêt complet de la rotation, et cette évolution n'est pas réversible! La thèse présentée est une thèse réalisée dans un cadre de cotutelle entre l'Université Paris 11 et l'Institut Supérieur des Sciences et Techniques Avancées - Université de La Havane à Cuba.

## Abstract

We built an experiment of optical tweezers based on the use of an inverted optical microscope. Two classes of micro objects were studied: 1 - spherical or roughly spherical colloidal particles, either homogeneous such as colloids of pure silica elaborated through a sol-gel method or commercial latex balls, or inhomogenous such as composite particles made up of a metal gold core embedded in a silica shell. 2 - micro-single crystals of a fluorescent organic molecule presenting a nonspherical, parallelepipedic form. Our study showed an effective trapping even on the smallest particles containing a gold core. For the hybrid gold-silica nanoparticules, the elastic constant of the optical trap measured in experiments is stronger than for the silica nanoparticules with a similar diameter. This result is in agreement with a simple model based on the increase in polarizability of the particle due to the presence of the gold core. The influence of the polarization of the light was studied and we discussed the choice of the detector of position. The organic microcrystals are directed so that their long axis is in the axial direction of the trapping beam, the short axis follows the direction of the linear polarization of the beam. In circular or elliptic polarization, the crystals are put spontaneously in rotation with high speed up to 500 turns per second. It is the first time that such a result is deferred for particles of the size of our crystals. Another surprising result is that when the incident power increases, the rotation speed also increases as expected but after the passage by a maximum, whereas the power continues growing, the rotation speed decreases until complete stop of rotation, and this evolution is not reversible! The thesis presented is a thesis carried out within a framework of cotutelle between the University Paris 11 and the Higher Institute of Science and Advanced Technologies - Havana University in Cuba.

# Chapitre 1 Introduction générale

D'abord soupçonné avec les observations des queues de comètes toujours orientées face au soleil par Kepler dès le 17ème siècle, puis les travaux de Maxwell et une première démonstration expérimentale par Lebedev au 19ème siècle, le fait que la lumière peut exercer des forces sur la matière, et donc sur des objets est désormais bien établi, mais considérées comme trop faibles pour être exploitables, ces forces sont restées à l'état de curiosité jusqu'à l'invention du laser dans les années 60. Dès lors, l'évolution fut rapide et continue grâce aux travaux dans lesquels le nom d'Arthur Ashkin revient souvent [1, 2] : premières réalisations dans les années 70 de pièges optiques à l'aide de deux faisceaux contrapropagatifs [3, 4], premières expériences de lévitation optique de microsphères [5–7], première pince optique stable à l'aide d'un faisceau laser unique fortement focalisé par un objectif à grande ouverture numérique créant une force optique de gradient en 1986 [8].

Le recours à un faisceau laser focalisé par un objectif de microscope orientait dès lors nombres d'applications potentielles vers la biologie avec des avantages particuliers à cette technique. C'est encore Ashkin qui fut novateur en ce domaine en réalisant les premières manipulations de virus et de bactéries ou d'organites à l'intérieur du cytoplasme cellulaire [9, 10]. D'une part, les pinces optiques ("optical tweezers" en anglais) permettent la manipulation précise d'objets sans aucun contact avec comme conséquence le fait de pouvoir rester en milieu parfaitement stérile lors de cette manipulation. D'autre part, les forces générées par les pinces optiques sont typiquement équivalentes aux forces mises en jeu dans un grand nombre de processus cellulaires (adhésion, mécanique du cytosquelette, motricité, fonctionnement des moteurs moléculaires, etc.). C'est pourquoi le développement des pinces optiques s'est fait et continue de se faire très majoritairement dans le domaine des applications biologiques. D'autres applications sont également considérées dans les autres domaines de la photochimie ou de la physique comme l'étude et le contrôle de particules colloïdales, de la polymérisation ou de la croissance cristal-

line par exemple. Des pinces optiques peuvent également être avantageusement combinées avec d'autres techniques comme la microscopie confocale ou la microscopie de fluorescence sous l'excitation laser à un ou à deux photons. Pour une revue assez complète et toujours d'actualité de ce domaine, on se réfèrera utilement à la référence [11].

Cette technique s'est donc largement diffusée dans les pays avancés au point que beaucoup de laboratoires les utilisent et qu'il existe même désormais des dispositifs commerciaux. Pour un pays comme Cuba où les ressources économiques restent limitées, l'acquisition de tels équipements ne semble pas possible dans un avenir immédiat, néanmoins, il est connu que des efforts de recherche et de développement dans les domaines de la biologie et des applications pharmaceutiques et médicales y sont menés avec persévérance.

C'est la première motivation de cette thèse : en tant que physicienne, il m'a semblé souhaitable de faire connaître les possibilités de cette technique et ses applications et de montrer que, même en l'absence d'équipements extrêmement coûteux, il doit être possible de construire un montage utilisant la technique des pinces optiques pour une application particulière. Ayant débuté ce travail dans un laboratoire qui n'avait pas d'antériorité dans ce domaine, j'ai dû passer par toutes les étapes et tâtonnements inhérents au développement d'un nouveau thème de recherche, mais cela n'en a été que plus formateur pour moi-même.

L'idée a donc été de construire un montage de pinces optiques non pour s'attaquer d'emblée à un problème de biologie, mais pour contribuer à l'acquisition d'une maîtrise dans la manipulation de micro- ou nano- objets attrayants pour un physicien ou un chimiste. Deux types d'objet constituent les centres d'intérêt principaux de ce travail : d'une part, les micro- ou nano- sphères homogènes de latex ou de silice que nous avons utilisés comme objets de référence à comparer avec des colloïdes composites synthétisés par nos soins et formés d'un cœur d'or entouré d'une coquille de silice; d'autre part, des micro-cristaux organiques élaborés à partir de molécules précurseurs fluorescentes que nous avons caractérisés optiquement et manipulés. On notera une certaine logique dans le développement de notre travail où, débutant par des objets de pure physique avec des sphères diélectriques, métalliques ou composites, nous avons poursuivi avec des matériaux organiques cristallisés, pouvant servir de support à la conception d'expériences prototypes pour la manipulation et le contrôle de protéines cristallisées par exemple, nous rapprochant ainsi nettement des champs d'intérêts de la biologie, de la médecine et de la

pharmacie.

Concernant l'utilisation de microbilles de latex ou d'autres matériaux, on rappelle qu'elles sont d'une grande utilité dans les applications en nanophysique, nanochimie ou biologie. En particulier, lorsqu'elles sont rendues fluorescentes par imprégnation ou association avec une substance colorante, elles peuvent servir de sonde de leur environnement, mais dans cette application, la taille de la particule peut être tout à fait importante et l'on veut pouvoir travailler avec les plus petits objets possibles. Depuis les premiers travaux, il est connu que la force optique sur une sphère diélectrique transparente diminue avec la taille de la bille. Pour augmenter la force optique éprouvée par de petites particules, une idée peut être de choisir une lumière de piégeage dont la longueur d'onde est proche d'une bande d'absorption de l'objet [12], mais cette solution n'est pas toujours appropriée selon l'application considérée, particulièrement pour des études biologiques. D'un autre côté, à l'opposé du cas des petites billes diélectriques, avec les particules conductrices en métal comme les colloïdes d'argent ou d'or, en raison de leur polarisabilité plus élevée, la force résultante est plus forte et des particules métalliques avec des tailles de quelques dizaines de nanomètres peuvent être capturées et manipulées [14, 15, 165]. Leur grand pouvoir de réflection et de diffusion de la lumière font que de tels objets peuvent être encore visibles à l'aide d'un microscope optique conventionnel, même lorsque leur taille est bien au-dessous de la résolution d'image de l'objectif du microscope [16].

Dans les domaines de la nanoingénierie et de la nanophotonique, l'importance des particules de taille nanométrique constituées d'un métal ou d'un semi-conducteur encapsulé dans une coquille diélectrique (polymère organique ou verre de silice) croît rapidement en raison de leurs applications potentielles pour la réalisation de structures artificielles de cristaux photoniques [17]. Certains des avantages des colloïdes métalliques encapsulés par rapport aux particules nues sont les suivants : 1- Les silices amorphes ont démontré leurs qualités pour la réalisation de couches minces optiquement transparentes, chimiquement inertes et photochimiquement stables. 2- L'enveloppe diélectrique empêche le contact direct entre les particules métalliques et permet donc la réalisation complète de structures photoniques à bande interdite. 3- L'extinction de la fluorescence d'un colorant fluorophore due à son attache directe sur le métal sera évitée grâce à la couche diélectrique, qui d'ailleurs peut également bénéficier à l'exacerbation de la fluorescence plasmonique [18].

Par conséquent, il semble approprié d'étudier le comportement de particules com-

posites ou hybrides (nous emploierons l'une ou l'autre désignation considérées comme équivalentes) afin de cumuler les avantages des deux milieux, le métal pour sa polarisabilité accrue et le diélectrique pour sa plus grande facilité et capacité de dopage avec des espèces fluorescentes ou chimiquement actives. Par des choix judicieux de leur taille, de leur structure interne et des molécules sondes pour leur dopage ou leur greffage à leur surface, il sera possible d'adapter ces particules à une fonctionnalité particulière. A noter aussi que le recours à une enveloppe diélectrique organique peut leur assurer une meilleure compatibilité biologique [19].

C'est la première motivation scientifique de notre travail où l'on s'est donné pour tâche de comparer les performances de particules composites par rapport à des billes conventionnelles de latex ou de silice dans des expériences de pinces optiques.

Le deuxième type d'objet que nous avons étudié part d'une autre problématique et justifie notre seconde motivation scientifique. Il s'agit de microcristaux organiques fluorescents [20, 21]. Leur taille, leur luminescence intrinsèque, les possibilités offertes par la chimie et la physico-chimie pour varier leur composition ou leur forme en contrôlant leur croissance en font des sondes particulières du milieu dans lequel on peut les plonger. L'idée de les manipuler en est tout autant attractive. En effet, il ne s'agit plus de billes sphériques mais d'objets présentant des formes et des morphologies diverses pouvant conduire, lorsque de tels objets sont soumis à un champ lumineux à des comportements inattendus. Dans notre travail, nous avons contribué à mieux caractériser certains de ces microcristaux et appris à les manipuler et à les animer à l'aide de pinces optiques. Ce travail peut présenter deux axes de développement futur tout à fait intéressants, chacun d'eux présentant de vrai défis à relever. Le premier concerne la manipulation complète d'un objet, disons de forme parallélépipédique, selon les 3 dimensions, à la manière de ce que font virtuellement les programmes de dessins en 3D, à l'aide d'un seul faisceau laser dont on contrôlerait la structure spatiale à l'aide d'un modulateur spatial de lumière. Le deuxième axe serait de rechercher les conditions d'une maîtrise de la croissance de ces microcristaux en les faisant croître capturés par une pince optique au sein d'une enceinte où l'apport des ingrédients serait parfaitement dosé grâce aux technologies issues de la microfluidique.

Dans l'un ou l'autre aspect de nos travaux, je voudrais souligner l'importance des interactions et des apports des chimistes. Il me semple important de noter que cette confrontation multidisciplinaire entre physique, chimie, biologie est toujours source d'idées

et de développements nouveaux, mais elle exige que chacun apporte ce qu'il a de meilleur à un projet mené ensemble. C'est pourquoi, je souhaite au-delà de mon travail de thèse, étape d'études et de formation, mais aussi de riches découvertes, poursuivre dans cette voie et aider au développement de cette technique de manipulation optique à l'aide de laser, de microscopie et autres composants optiques, outils du physicien, dans mon pays en collaboration avec des chercheurs d'autres domaines, chimistes, biologistes et médecins plus particulièrement.

Mon travail de thèse s'est effectué dans le cadre d'une co-tutelle entre l'Université de La Havane et l'InSTEC (Institut Supérieur des Sciences et Techniques Avancées), mon centre de travail le CEADEN (Centre d'Etudes Avancées et du Développement Nucléaire) d'une part et l'Université de Paris 11 à laquelle le Laboratoire Aimé Cotton du CNRS est rattaché d'autre part. C'est probablement la première co-tutelle en physique entre les deux universités. Les conditions actuelles d'une co-tutelle ne rendent pas aisée la préparation d'une thèse de doctorat. J'ai effectué plusieurs séjours en France de 5, puis 6, ensuite 8 et finalement 4 mois, entrecoupés de retours dans mon pays où les conditions de travail sont loin d'être satisfaisantes. Toutes les expériences ont été effectuées en France et j'ai accompli à Cuba surtout la recherche bibliographique et la réflexion théorique et conceptuelle. De ces conditions particulières, il peut résulter des insuffisances sur tel ou tel point, mais, à ma décharge, j'observe qu'un travail de recherche, tel qu'une thèse peut le concrétiser à un moment donné, n'est jamais qu'une étape d'un travail et d'une quête jamais achevée et toujours en devenir.

Le manuscrit de ma thèse est organisé comme suit : après ce premier chapitre d'introduction générale où sont précisées les motivations personnelles et scientifiques qui ont conduit à ce travail, le deuxième chapitre fait un point que j'espère complet sur l'historique, l'évolution et l'état de l'art actuel des pinces optiques. C'est le chapitre bibliographique par excellence qui introduit les concepts essentiels et l'évolution des idées et techniques dans le domaine. Le troisième chapitre est centré sur les considérations théoriques. Nous débutons en présentant la théorie du piégeage optique à travers deux modèles que nous qualifierons de relativement rudimentaires mais d'une force opératoire remarquable car l'un et l'autre très intuitifs, et adaptés au traitement des situations extrêmes rencontrées en pratique, celle où la taille des objets est très petite au regard de la longueur d'onde de la lumière, c'est le modèle dit de Rayleigh où l'objet est assimilé à un dipôle ponctuel, et

celle opposée ou au contraire la taille des objets et bien plus grande que la longueur d'onde de la lumière et c'est le domaine d'application de l'optique géométrique. Nous évoquerons l'autre approche, considérée comme exacte car permettant de respecter les équations de Maxwell tout en prenant en compte l'illumination par un faisceau laser extrêmement focalisé. Nous utiliserons ce modèle pour évaluer nos résultats expérimentaux en terme de force de piégeage grâce à un programme mis à disposition des utilisateurs, mais il s'agit là d'un domaine théorique pour lequel, très clairement, la littérature scientifique montre que cette modélisation nécessite d'être à l'état de l'art en électromagnétisme et que comme je l'ai indiqué auparavant, tel n'était pas notre but principal. Nous évoquons dans ce chapitre les particularités des systèmes que nous avons étudiés : objets composites et micro cristaux organiques pour lesquels nous suggérons des adaptations des modélisations rudimentaires précédemment considérées. Le quatrième chapitre présente les différents éléments essentiels à réunir et à agencer pour construire une expérience de pinces optiques. Différentes solutions ou choix techniques possibles sont évoqués. Nous décrivons ensuite en détail le montage que nous avons construit et utilisé pour nos expériences. Nous présentons et discutons aussi dans ce chapitre les différentes méthodes de calibrage qu'il est possible de mettre en œuvre pour évaluer la force des pièges optiques. Nous justifions dans ce chapitre le choix de la technique de calibrage que nous avons retenu pour nos mesures. Enfin, le cinquième chapitre est sûrement le plus important puisque l'on y présente les différents résultats les plus notables que nous avons obtenu tant pour la comparaison entre les particules homogènes et les particules composites, comme pour les observations effectués sur l'orientation et la mise en rotation des micro-cristaux organiques. Bien sûr, nous discutons et présentons un point de vue critique sur les résultats précédemment décrits, sachant que certains d'entre eux posent des questions non totalement éclaircies et peuvent susciter des discussions et interprétations soumises à controverse. Finalement, le sixième chapitre, qui est le dernier, expose les développements et orientations futures possibles. Certaines sont déjà effectives dans d'autres laboratoires, d'autres sont en devenir comme celle qui concerne l'idée de maîtriser la croissance d'un microcristal piégé dans une pince optique et dans l'environnement d'une cellule de micro-fluidique permettant un contrôle précis des solvants et précurseurs nécessaires. Après la conclusion générale, des annexes précisent en détail certains points qui n'ont été que brièvement exposés dans le corps du manuscrit.

### Chapitre 2

## Etat de l'art des pinces optiques

### 2.1 Présentation générale des pinces optiques

Avant d'arriver à une compréhension et à une présentation complète du fonctionnement d'un montage de pinces optiques, il est nécessaire de rappeler les idées de base comme celle de la pression de radiation qu'exerce la lumière sur les corps matériel. Ces forces de pression de radiation se manifestent de plusieurs manières. De façon générale, ce sont les forces qui se transmettent à la matière lors de son interaction avec la lumière à travers les processus d'absorption, de dispersion/diffusion, d'émission ou de re-émission. Nous débutons ce chapitre par une introduction historique.

#### 2.1.1 Existence de la pression de radiation

Les premières observations descriptives de l'existence d'une pression de radiation remontent à la première moitié du XVIIème siècle. L'astronome allemand Johannes Kepler, dans ses études sur le mouvement des comètes nota que la queue des comètes s'éloignait toujours de la trajectoire du noyau de celle-ci lors de son passage à proximité du Soleil (Figure 2.1), ce qui lui a permis de proposer l'hypothèse selon laquelle c'est le rayonnement du Soleil lui-même qui est le responsable de ce déplacement <sup>1</sup> [22]. Cette inspiration

¹Le texte suivant est de Christian Huygens, écrit en 1681, il reprend les hypothèses de Kepler : "Quoyque en mettant la route de la comete sur la ligne MON j'aye reduit la longueur de sa queue a la longueur MO, elle peut encore paroitre d'une estendue extremement grande comme estant de 5 a 6 mille diametres de la terre a raison de la distance de la terre au soleil de 10 ou 12 mille de tels diametres comme je la crois. Mais si l'on considere combien s'estend la fumée de quelque petit corps qui brusle icy bas, et que vraisemblablement la queue de la comete peut estre de mesme quelque fumée ou exhalaison de la teste, cette estendue ne paroitra pas tant disproportionnée. Et il est a scavoir que cette fumée ou vapeur de la queue est tout autrement subtile et tenüe que nos fumees icy sur la terre, et mesme incomparablement plus transparante que n'est notre air dans le temps le plus serain, puisqu'une espesseur de la queue plus de mille fois plus grande que n'est l'espesseur de nostre atmosphere, ne recoit pas la centieme partie autant de clartè que fait cet air de l'atmosphere, qui empesche les estoiles d'estre vües pendant le jour, les quelles se voient fort facilement à travers la queue de la comete. Et il est certain que le bleu de nostre air paroistroit dans la nuit presque aussi luisant que le disque de la Lune. C'est donc une vapeur qui n'a besoin que de tres peu de matiere qui compose cette queue, soit que ce soit une fumée, et que la teste soit le corps qui brusle, ou que sans brusler elle jette cette vapeur; qui a raison de sa legeretè a l'egard de

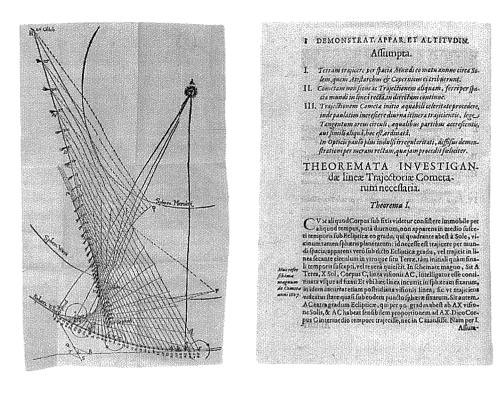


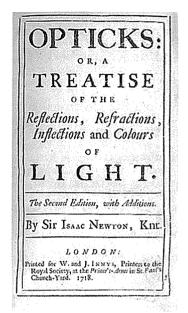
Fig. 2.1: Images du traité "De Cometis" publié en 1619. Le livre résume les observations faites sur les comètes par Kepler pendant la période qui va de 1607 à 1618.

géniale suggère que la lumière exerce une influence mécanique sur la matière, argument qui va résulter de grande valeur pour la compréhension ultérieure des effets de la pression de radiation dans l'univers.

Dans sa théorie corpusculaire de la lumière, Newton considéra aussi l'idée que la lumière exerce une pression sur les corps matériel <sup>2</sup> [23] (Figure 2.2). Ceci stimula différentes tentatives expérimentales au cours des XVIII et XIXème siècles pour mesurer la pression de radiation, expériences qui ont toujours échoué à cause de la faiblesse de ces forces et de l'importance des effets thermiques, responsables notamment de l'agitation moléculaire qui augmente avec la température. Cependant, il est amusant de noter qu'entre autres différentes tentatives, Sir William Crookes inventa le radiomètre, dont le

la matiere du tourbillon solaire, où est la comete, tend a s'eloigner du soleil a mesure qu'elle s'evapore"

<sup>2</sup>Quand Newton développa ses conceptions sur le comportement et la nature de la lumière, en particulier l'idée selon laquelle la lumière est composée d'un spectre de couleurs, il avança aussi une série
d'assertions destinées à stimuler les recherches. En 1718, dans son livre qui fait un bilan de ses travaux,
il proposa 31 questions considérées comme la partie la plus provocatrice du livre. Newton a également
spéculé sur l'existence d'un fluide, l'éther, qui inonderait tout l'espace et qui servirait de support à la
lumière pour sa propagation.



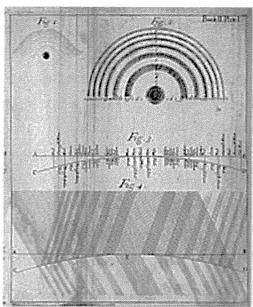


Fig. 2.2: Page de titre et figures de la seconde édition du livre "Opticks" de Newton publié en 1718.

fonctionnement reste toutefois controversé, précisément à cause de l'influence notable des effets thermiques dus à la présence éventuelle d'un gaz résiduel dans l'ampoule contenant le moulinet tournant avec ses pales blanches d'un côté, noires de l'autre. Au cours de l'année 1873, Maxwell fit usage de sa nouvelle théorie électromagnétique pour démontrer théoriquement l'existence de la pression de radiation [24]. A la suite, dans les années 1870, par une démarche toute diférente, Adolfo Bartoli réussit à démontrer l'existence de la pression de radiation, à partir seulement de considérations thermodynamiques. Il a argué du fait que la température radiante d'un corps peut être augmentée en réfléchissant sa lumière sur un miroir mobile, et donc il serait ainsi possible de transporter de l'énergie d'un corps plus froid à un corps plus chaud. Pour éviter cette violation de la deuxième loi de la thermodynamique, il montre qu'il est nécessaire que la lumière exerce une pression sur le miroir [25, 26]. Suite à ces travaux, la pression de rayonnement s'est parfois également appelée "pression de Maxwell-Bartoli".

Cependant, les forces prédites se sont avérées extrêmement petites pour la lumière ordinaire. Les prévisions de Maxwell ont été vérifiées quelques années plus tard dans les

expériences de Lebedev en 1901 et celles de Nichols et Hull peu après en 1903, dans lesquelles la pression de radiation a été déterminée, sans la perturbation des effets thermiques, par le mouvement de rotation d'un plateau suspendu à une fibre très fine dans une enceinte à vide poussé [27–29]. Egalement, au début du XXème siècle, Compton observa expérimentalement l'effet des forces générées par l'interaction entre un photon et une particule dans les processus de diffusion de photons par des électrons. Bien que l'impulsion associée à un photon individuel dans le domaine visible soit très faible et de l'ordre de seulement  $10^{-27}$  Ns, l'effet Compton est bien réel et a contribué à fortifier l'idée du photon porteur de quantité de mouvement, à l'égal de toute particule de matière.

En 1908, Mie calcula la diffusion de la lumière par une particule sphérique, c'est-àdire parfaitement isotrope, illuminée par une onde plane [30], dont la solution est connue comme celle de la théorie de Mie [31]. Egalement, Lorenz et Debye étudièrent le problème, d'où la dénomination de théorie de Lorenz-Mie.

Le problème principal dans l'étude de la pression de radiation est qu'avec des sources de lumière ordinaires, ces forces sont très petites et affectent très peu la dynamique des particules, en comparaison avec les forces thermiques causées par les gradients de température dans le milieu qui entoure les objets. Ces forces sont généralement de plusieurs ordre de grandeur supérieures aux forces de pression de radiation et jusqu'à l'invention du laser à la fin des années 1950, l'étude des effets de pression de radiation resta donc forcément limité. A partir des années 1960, il apparut très vite que grâce au haut degré de monochromaticité et de cohérence spatiale des sources de lumière laser, il était possible de les focaliser en un point avec un rayon proche de celui donné par la limite de diffraction, ce qui permettait d'obtenir des densités de puissance élevées et donc l'espoir de générer des forces optiques conséquentes. Cependant, cette idée ne s'est pas imposée tout de suite pour utiliser ainsi la pression de radiation, mais le panorama changea cependant lorsqu'en 1969, Ashkin utilisa pour la première fois un laser pour observer l'influence de la pression de radiation sur des particules très petites [2].

#### 2.1.2 Pression de radiation laser

En fait en 1969, Arthur Ashkin, alors travaillant dans les laboratoires Bell, commença à s'intéresser très sérieusement à la pression de la lumière après avoir calculé l'amplitude de la force de pression exercée par un rayonnement sur un miroir parfaitement réfléchissant. Dans cette situation idéale, il déterminait ainsi la force maximale qui peut être extraite de la quantité de mouvement de la lumière dans un processus qu'il a appelé "back of the envelope", signifiant ainsi le retour sur lui-même d'un front d'onde ou d'un flux de photons [1]. En évaluant la force qui pouvait ainsi être appliquée par un faisceau d'une puissance de 1 W illuminant une particule d'un diamètre de 1  $\mu m$ , il s'est rendu compte qu'il pouvait en résulter une accélération de la particule pouvant atteindre jusqu'à un million de fois l'accélération de la gravité. Il conclut donc très justement que, dans ces conditions, les effets de la pression de radiation devraient être observables (Annexe A).

A partir de ce simple résultat, il réalisa la première expérience qui utilise la pression de radiation laser pour accélérer et piéger des particules [3]. Dans cette expérience, Ashkin utilisa des sphères transparentes de latex pour éviter l'effet de chauffage en raison de la grande intensité de la lumière. Ces sphères, d'un diamètre compris entre 0,59 et 2,68  $\mu m$ , en suspension dans l'eau, étaient illuminées par le faisceau à  $\lambda = 0.5145 \ \mu m$  et en mode  $TEM_{00}$  d'un laser à argon ionisé focalisé et le résultat était observé au microscope. L'action du faisceau laser continu avec seulement quelques milliwatts de puissance sur les sphères de latex accélérait celles-ci dans la direction de propagation de la lumière, avec une vitesse de l'ordre de quelques micromètres par seconde, tandis que quand le faisceau était interrompu, les billes se mouvaient aléatoirement sous l'influence du mouvement brownien. Dans cette expérience une composante non prévue de la force a été découverte, cette composante surprenante poussait fortement les particules qui se trouvaient sur les bords du champ lumineux vers la région de plus forte intensité. Il en résultait ainsi que les particules se déplaçaient dans un guide de lumière [32]. Ashkin attribua initialement ce comportement à la déformation de la surface du liquide, précédemment postulé par Kats et Kantorovich [33]. Cependant cette observation donna l'idée d'une nouvelle expérience où, à partir de l'utilisation de deux faisceaux lasers de même puissance et se propageant dans des directions opposées, il fut possible d'effectuer une capture et un piège optique stable dans trois dimensions, basé directement les effets de la pression de radiation. Ce premier piège a été appelé piège à faisceaux contre propagatifs ou "counter-propagating beams" en anglais [34]. Cette expérience a immédiatement réveillé la curiosité d'expérimenter la possibilité d'accélérer et de capturer des atomes et des molécules.

A cette expérience d'autres suivirent comme par exemple celle de la fontaine optique ("optical fountain" en anglais), capable de maintenir en lévitation des sphères transpa-

rentes dans l'air ou dans le vide [3, 7]. Dans ce montage, un faisceau laser est dirigé verticalement de sorte que la force de pression compense les effets de la gravité.

Postérieurement, une grande variété de systèmes optiques basés les forces de gradient et de dispersion ont été développés pour la capture de particules diélectriques neutres et d'atomes [35–37]. Le plus simple des pièges optiques imaginés avec l'intention de capturer des atomes, utilise un faisceau laser de mode gaussien fortement focalisé, capable d'obtenir la stabilité axiale du piège grâce aux forces de gradient. Cette idée constitue la première suggestion des pinces optiques pour piéger des atomes [38]. Tous ces travaux mentionnés ont marqué le début du domaine de l'optique atomique où a commencé à être théoriquement décrit le mouvement des atomes dans un piège de rayonnement [39]. Dans le domaine, la référence reste les travaux aussi significatifs que ceux développés par Arthur Ashkin en 1980, conduisant notamment à un article de référence concernant les questions en rapport avec les forces optiques exercées sur les atomes [36]. L'illustration suivante de la figure 2.3 résume à grands traits l'histoire de la pression de radiation jusqu'aux pinces optiques.

Il restait seulement à confirmer cette hypothèse expérimentalement. Apparaît ainsi la première expérience de pinces optiques en 1986, bien connue aujourd'hui par sa dénomination en anglais comme "single-beam gradient force optical trap", où fut expérimentalement démontré l'existence des forces de pression associées au gradient axial d'intensité [8]. Dans cette expérience, de petites particules diélectriques, avec des dimensions comprises entre 25 nm et 10 µm furent capturées dans l'eau. Les auteurs ont utilisé pour cela un laser à argon ionisé à 514,5 nm focalisé au travers d'un objectif de microscope à immersion dans l'eau de grande ouverture numérique (O.N.=1,25) créant ainsi une région de grande intensité lumineuse. Le résultat primordial de cette expérience a été la mise au point d'une nouvelle technique qui a permis de générer des forces optiques de capture maximales, permettant d'étendre les domaines d'application à d'autres systèmes, tels les colloïdes, les biomolécules. Ainsi fut publié le premier article rapportant la capture d'organismes vivants comme des virus et des bactéries et les dommages optiques associés à ce processus [9].

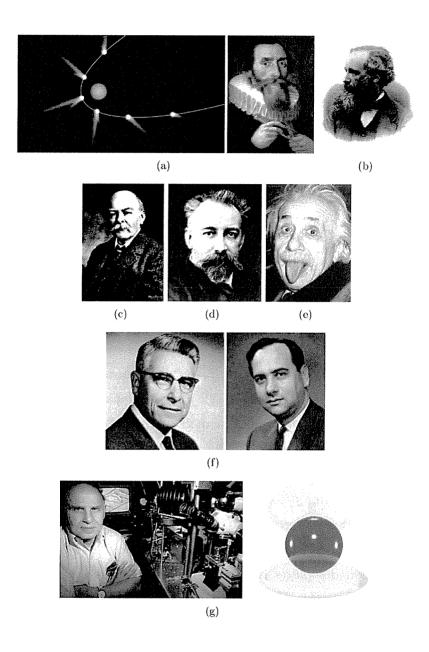


Fig. 2.3: Le livre de famille des forces optiques : (a) Premières observations de Kepler sur les queues cométaires (environ 1610). (b) Les équations de Maxwell donnent la première description mathématique des forces dues à la lumière (1861). (c) Sir Poynting souligne l'inadéquation des forces lumineuses dans les affaires terrestres. (d) Lebedev réalise la première expérience pour quantifier la pression de radiation (1899). (e) Einstein suggère le mécanisme de génération de lumière par émission stimulée (1916). (f) Gordon Gould et Théodore Maiman construisent indépendamment les premiers lasers (1960). (g) Ashkin développe les premiers pièges optiques en utilisant un seul faisceau laser focalisé (1986).

# 2.2 Evolution des pinces optiques

Surtout depuis la fin des annés 1980, les pinces optiques ont connu un dévelopement continu et suscité un intérêt croissant. La compréhension théorique a suscité l'élaboration d'une vaste gamme de modèles avec différents degrés de sophistication. Au delà des situations limites de l'optique géométrique pour de gros objets transparents d'une part ou au contraire de celle du dipôle ponctuel pour des objets nanométriques ou moléculaires d'autre part, d'importants efforts ont été accomplis dans le cadre de théories utilisant une description complète du champ électromagnétique fondée sur les équations de Maxwell [40]. Les efforts déployés vont de pair avec le traitement de la diffusion de la lumière. Les difficultés réelles apparaissent pour traiter correctement la situation d'objet ne répondant pas à la symétrie sphérique. Les autres développements théoriques concernent le traitement de situations dans des champ lumineux non gaussiens ou arbitraires [41].

La capture optique a été observée avec des particules dont les dimensions peuvent varier entre quelques angstroms et quelques centaines de micromètres, soit un domaine de variation de  $10^6$  ou 6 ordres de grandeur. La technique des pinces optiques utilisant des faisceaux lasers fortement focalisés est elle capable de couvrir, à la température ambiante, un domaine qui va de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de micromètres. Les appareillages développés vont de simples montages utilisant des lentilles à des instrumentations complexes intégrant des technologies sophistiquées. De nouvelles techniques ont été développées pour une détection rapide de position, la détermination de la force d'un piège et l'application de forces contrôlées et calibrées. Les avancées instrumentales ont conduit à la réalisation de montages à pièges multiples où le contrôle des faisceaux laser ou de la position des pièges est assuré par ordinateur. D'autres développements et évolutions récentes concernent la combinaison des pinces optiques avec d'autres techniques comme la spectrocopie de fluorescence, la diffusion Raman normale ou exacerbée par effet de surface ou encore, l'association avec d'autres méthodes comme celles reposant sur l'utilisation de micropipettes ou de pinces magnétiques.

Concernant l'évolution des pinces optiques, il est remarquable de relever que cette technique est née de travaux initiaux de physiciens, notamment Ashkin qui a contribué a maints développements mais qui, aussi, a été le premier à démontrer qu'il était possible de capturer des cellules vivantes, introduisant ainsi une nouvelle technique non-invasive pour les manipulations biologiques. Les biologistes furent dès lors les premiers à faire un usage

intensif de cette technique, et postérieurement, les physiciens et les chimistes étendirent son usage à leur discipline.

En forme résumé et récapitulative, et en nous inspirant partiellement de la "lettre de ressource" de Lang et Block [11], nous énumérons ci-après les divers axes d'expériences où les pinces optiques démontrent tout leur intérêt.

### 1. Développements expérimentaux

Les développements expérimentaux ont principalement concerné les problèmes de mesure de position et de la force du piège avec une incroyable précision soit dans le cas de systèmes biologiques, soit dans l'étude de milieux colloïdaux ou microfluidiques. D'un autre côté, s'est aussi dévelopé l'étude des propriétés de la structuration spatiale des faisceaux lumineux et de leur influence sur les forces de piégeage. Aujourd'hui, les dispositifs optiques permettent de créer des pinces multiples avec la possibilité de les contrôler indépendamment les unes des autres, offrant ainsi un contrôle selon les trois dimensions de l'espace. Sous cet aspect, l'introduction des techniques holographiques, notamment des hologrammes de phase, permet de moduler un faisceau laser pour générer pratiquement n'importe qu'elle distribution spatiale d'intensité souhaitée (Figure 2.4). Les articles pionniers dans ce domaine sont ceux notamment de Fournier en 1995 [42] et de Grier en 2002 [43]. Ces travaux introduisirent l'usage des modulateurs spatiaux de lumière qui permettent de créer des structures spectrales complexes en temps réel [44] et d'étendre le nombre de pièges manipulés simultanément à plus de cent!

Différentes innovations technologiques ont vu le jour comme récemment l'utilisation d'un réseau optique à partir de figures d'interférences avec des caractéristiques d'intensité de la lumière permettant d'obtenir une sélectivité des objets capturés en prenant en compte leur polarisabilité [46], ou encore les expériences qui ont permis la mesure de forces aussi faibles que quelques  $25 \ fN$ , soit des forces d'interaction les plus faibles jamais mesurées [45]. Quelques uns des travaux les plus récents apparaisent en forme résumée dans l'article "Optical tweezers : 20 years on" publié en 2006 [47]. Dans ce qui suit, nous résumons quelques applications que nous considérons comme les plus importantes selon notre appréciation.

#### 2. Molécules uniques

C'est un domaine un peu à l'écart du champ abordé dans notre travail, plus en prise

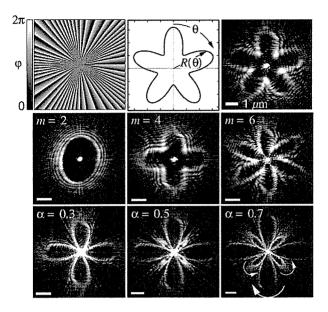


Fig. 2.4: Création d'un vortex optique avec un hologramme dynamique. La première figure montre la modulation de phase appliquée au faisceau laser, puis la prédiction du profil d'intensité et la distribution de l'intensité mesurée expérimentalement. Les figures suivantes montrent des exemples de modulation de vortex pour différentes valeurs du nombre m de lobes générés pour les figures de Lissajous et de l'amplitude  $\alpha$  [48].

avec les potentialités des pinces optiques pour la manipulation d'objets d'intérêt chimique ou biologique.

Pour tout ce qui concerne l'étude de molécules uniques, la question de la précision des mesures revet un aspect d'importance décisive, en particulier la détermination précise des forces exercées par la pince optique est particulièrement exigée. Notamment, les pinces optiques ont été utilisées de façon très satisfaisante pour étudier le mouvement de protéines uniques dans la membrane cellulaire [49]. Avec l'aide de pinces optiques, il est possible de capturer des molécules situées dans la membrane cellulaire grâce à l'aide d'une petite particule d'or piégée et ainsi de contrôler le déplacement des molécules dans la membrane.

Les applications les plus récentes incluent l'étude de la fluorescence de molécules uniques combinée avec l'usage de pinces optiques [50, 51]. Par cette approche, il est possible d'établir une corrélation directe entre les changements structuraux au niveau nanométriques révéles par la fluorescence de ces molécules et les changements mécaniques générés par les forces exercées par le piège optique.

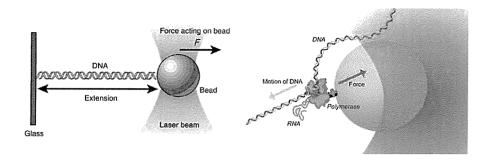


Fig. 2.5: A gauche, schéma représentant le principe de la mesure de l'élasticité de la molécule d'ADN. A droite, une molécule d'ARN polymérase est liée à une micro-sphère de latex piégée par une pince optique.

#### Molécule d'ADN

Une des molécules certainement d'une grande importance est bien sûr la molécule d'ADN. L'étude de l'élongation de la double hélice d'ADN a été le sujet de nombreux travaux théoriques et expérimentaux. Les mesures ont concerné aussi bien les interactions entre paires de base ou le problème de la mobilité des chromosomes [52]. Les chromosomes ont été manipulés avec des pinces optiques pour réaliser des études sur la division cellulaire [53].

Les études dynamiques au niveau des molécules uniques comme les molécules d'ADN ou d'ARN ont grandement progressé grâce aux manipulations à l'aide de pinces optiques. Il est ainsi possible aujourd'hui de mesurer la force appliquée à une molécule d'ADN qui est fixée par l'une de ses extrémité à la surface d'un porte-échantillon et par son autre extrémité à une bille de latex que l'on maintient par une pince optique. On peut ainsi mesurer directement l'élasticité de la molécule d'ADN (Figure 2.5). Une autre application a été l'étude de molécules d'ARN polymérase responsables de la transcription du contenu de l'ADN en ARN messager [54]. Pendant la transcription, la molécule d'ARN polymérase se déplace le long du brin d'ADN pour former pas à pas l'ARN messager et il est possible de détecter ce mouvement avec une précision de l'ordre de l'angstroem en liant une sphère de latex à la molécule de d'ARN polymérase (Figure 2.5), le déplacement de cette molécule affectant la position de la bille dans le piège optique.

La séparation de la double hélice de l'ADN est réalisable à travers l'action d'une force mécanique exercée avec une pince optique. Il a ainsi été possible de déterminer

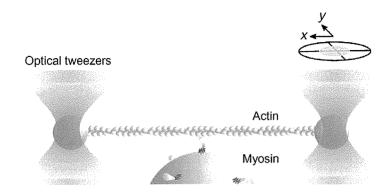


Fig. 2.6: Un unique filament d'actine est suspendu entre deux billes de latex maintenues en position par deux pièges optiques. Une molécule de myosine interagit avec le filament le long duquel elle peut se déplacer [58].

la force avec laquelle sont liées les paires de bases azotées et on a pu établir que ces forces varient selon la séquence de paires de bases [55, 56].

#### 3. Moteurs biologiques

La grande majorité des processus biologiques impliquent la transformation de l'énergie chimique en énergie mécanique au travers de ce qu'il est habituel d'appeler des moteurs moléculaires. Des processus comme le transport intra-cellulaire, le mouvement de bactéries, la réplication de l'ADN ou la contraction musculaire sont des exemples où interviennent différents types de moteurs moléculaires.

Les moteurs biologiques sont d'excellents systèmes modèles pour l'étude des mouvements des protéines ou de leurs changements de conformation. En particulier, de nombreuses études concernent le problème du fonctionnement des fibres musculaires où agissent des molécules comme la kinésine ou la myosine. Les mouvements des flagelles ont aussi été étudiés. Un système prototype souvent étudié est constitué d'un filament d'actine attaché à ses extrémités à des billes de latex, elles mêmes maintenues en position par deux pièges optiques (Figure 2.6). On étudie alors le déplacement de molécules de myosine qui avancent le long du filament d'actine sous l'influence d'un apport énergétique [57, 58]. Ces études tout à fait fondamentales permettent une meilleure compréhension des mécanismes intimes de la contraction musculaire.

#### 4. Manipulations de cellules

C'est un domaine où les expériences sont nombreuses. Grâce au fait que les rayons

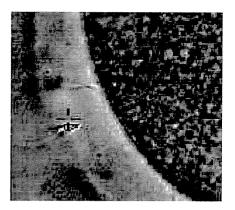


Fig. 2.7: Aide à la fertilisation: manipulation de gamètes et de spermatozoïdes [59]. La manipulation optique de cellules mobiles comme les spermatozoïdes pour la mesure de leur force de propulsion flagellaire constitue un outil diagnostique de certaines stérilités.

lumineux traversent aisément les membranes cellulaires, les chromosomes, mitochondries et autres organites intracellulaires peuvent être manipulés par des pinces optiques. Le fonctionnement cellulaire a ainsi fait l'objet de nombreux travaux. En particulier, on relèvera les études portant sur l'influence d'un stress causé à une cellule que l'on a emprisonnée par plusieurs billes venant exercer une pression autour d'elle, sur son métabolisme. D'autres études sur les cellules combinent les pinces optiques avec la micro-chirurgie laser ou au micro-scalpel, ou encore avec l'utilisation de sondes fluorescentes que l'on vient positionner en des zones précises de la cellule. Une application intéressante concerne l'étude des gamètes et spermatozoïdes et l'aide que les pinces optiques peuvent apporter pour aider à la fertilité humaine ou animale (Figure 2.7). Dans ces travaux avec des faisceaux lasers, une attention a été apportée aux dommages cellulaires que l'usage de lasers soit trop puissants, soit à une longueur d'onde inadaptée peut causer.

En assurant un contrôle précis des forces exercées sur les membranes des cellules, les pinces optiques ont contribué à une meilleure connaissance de leurs propriétés viscoélastiques (Figure 2.8). Entre autres exemples, on peut citer les études de l'élasticité de la membrane du globule rouge pour comprendre comment l'absence ou l'anomalie de certaines protéines membranaires peut entraîner une déformation persistante du globule susceptible de favoriser sa destruction prématurée, celles des propriétés viscoélastiques de protéines ou de chaînes peptidiques, de la flexibilité et

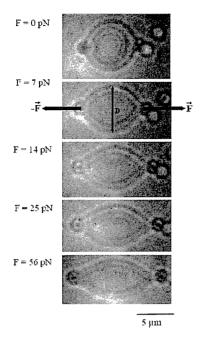


Fig. 2.8: Mesures de propriété visco-élastiques de cellules étirées : un globule avec deux billes en position diamétralement opposée est déformé en augmentant la distance entre les pièges. La variation de diamètre D est mesurée en fonction de la force F.

de la résistance à la torsion de brins d'ADN, de la sélection et de la mise en contact de cellules photosensibles avec des cellules neuronales pour étudier le développement des contacts intercellulaires et la régénération de synapses entre ces 2 types cellulaires. Citons enfin l'association de pinces et de ciseaux optiques pour sélectionner, couper, déplacer et injecter des éléments d'une cellule dans une autre ou simplement d'une position à une autre.

#### 5. Application non-biologiques

Un autre grand domaine d'applications concerne l'étude et la fabrication de nanomoteurs ou de micro-moteurs (Figure 2.9), un thème de recherches où beaucoup de travaux portent sur les différentes possibilités de mettre en rotation par la lumière de petits objets et de contrôler leur vitesse et sens de rotation [60]. Les applications diverses envisagées concernent notamment la micro-fluidique : moteurs de circulation, agitateurs, vannes, viscosimètres locaux, etc. L'idée motrice de ces recherches en micro-fluidique souvent combinées avec l'utilisation de pinces optiques est la réalisation de micro-laboratoires ou "lab-on-a-chip". Dans la compréhension

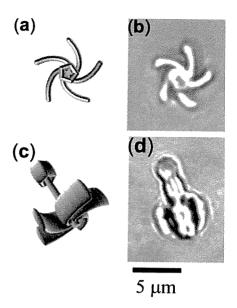


Fig. 2.9: Réalisation de nano-moteurs animés par le faisceau laser d'une pince optique. Le rotor se met à tourner au voisinage du foyer d'un objectif à grande ouverture numérique. Le sens de rotation change selon que le rotor est au dessus ou au dessous du foyer [60].

de systèmes colloïdaux, cette technique a déjà démontrée sa grande utilité pour étudier leur comportement dynamique et les interactions entre particules colloïdales [61, 62].

La technique des pinces optiques se couple aussi très bien avec d'autres expériences utilisant des lasers comme la spectroscopie de fluorescence à un ou à deux photons, les effets non-linéaires du deuxième ou du troisième ordre, la diffusion et la spectroscopie Raman [63]. Une nouvelle technique récente combine les pinces optiques avec l'électrophorèse. On l'appellé diélectrophorèse induite par la lumière ou LIDEP pour "Light Induced DiElectroPhoresis" en anglais. Dans la technique LIDEP, la lumière se substitue à certaines fonctions normalement dévolues aux électrodes [64]. Enfin, un autre vaste champ d'applications potentielles concerne la manipulation de nano-objets pour construire des assemblages bi- ou tri- dimensionnels aux fins de créer des dispositifs pour des applications en photonique, électronique ou optronique.

Cette compilation de travaux récents met nettement en évidence l'extrême vitalité du domaine des pinces optiques qui, débuté en 1986, ne cesse de donner lieu à de nouveaux champs d'applications et de découvertes. A la suite, nous détaillons les développements

plus concernés par nos propres axes de recherche qui orientent cette thèse.

#### 2.3 Travaux récents en relation avec nos études

L'expansion des domaines d'études et d'applications des pinces optiques concerne aujourd'hui des matériaux et des géométries tellement différents que les forces appliquées à de petits objets de formes diverses, cylindrique, orthohédrique, en anneaux, disque, ellipsoïde, ont commencé à être décrites en détail. L'anisotropie des objets capturés est quelque chose qui peut modifier les caractéristiques d'un piègeage optique et augmenter la complexité des modèles qui permettent de décrire ces forces. Non seulement on a essayé de traiter le cas des géométries telles celles énumérées précédement, mais l'idée est de modifier la forme et la composition des particules piégées pour déterminer et produire la géométrie la plus favorable selon l'application particulière. D'autre part les matériaux ont aussi apporté de la complexité à la description du piégeage optique, notamment le développement durant les dernières années de la combinaison de plusieurs matériaux conduisant aux systèmes dits hybrides ou aussi composites dont on espère tirer avantage des propriétés particulières de chacun des composants.

#### 2.3.1 Particules sphériques composites ou hybrides

En particulier, les systèmes colloïdaux hybrides composés d'un métal et d'un diélectrique ont suscité un grand intérêt, mais sont restés éloignés du domaine des pinces optiques. La synthèse de tels systèmes composites a été brevetée en 1959, où ont été étudiées des particules sphériques avec une enveloppe de silice et différents matériaux comme le titane ou l'aluminium à l'intérieur [65]. Les procédures d'obtention de particules comme celles-ci ont été largement simplifiées [66–68], et bien qu'on utilise parfois des systèmes d'interfaçage entre la surface du métal et l'enveloppe diélectrique pour obtenir des couches uniformes, plus récemment, on a trouvé qu'il est possible d'obtenir des couches de recouvrement uniformes et d'épaisseur contrôlée relativement simplement par la mise en oeuvre de procédés issus de la technologie sol-gel [69].

Ces systèmes sont apparus dans quelques applications aussi intéressantes que la fabrication de dispositifs photoniques et de guides d'onde plasmoniques dont un exemple est donné sur la figure 2.10. L'exaltation Raman de surface ("Surface Enhanced Raman Scattering" ou SERS en anglais) a été observée sur des nano-particules uniques en utilisant

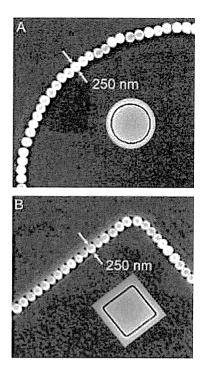


Fig. 2.10: Guide d'ondes plasmoniques construit à partir de petites billes composites avec un cœur métallique interne [182].

des systèmes hétérogènes constitués de particules composites métal-diélectrique [70]. Une autre application est dans l'obtention d'images de résonance magnétique subcellulaires [71] ou dans la réalisation de fibres basées sur l'utilisation de systèmes silice-or-fluorophore pour la fabrication de senseurs sélectifs pour l'oxyde nitrique [72].

La première étude d'un système hybride en présence d'un piège optique a été rapportée en l'an 2000 [73]. Dans ce travail, les auteurs ont considéré le fait que dans les systèmes colloïdaux, on diminue les effets des interactions de Van der Waals en éliminant la différence d'indice de réfraction entre la particule et le milieu, ce qui agit au détriment de l'obtention d'un piège optique efficace. A partir de cette idée et pour éliminer cet obstacle, les auteurs ont utilisé des systèmes hybrides titane-silice d'un diamètre de  $0,5~\mu m$ , où la différence d'indice entre le titane et la silice produit une force optique suffisante pour permettre le piègeage. Ils ont obtenu que dans un système binaire composé de particules de silice pure et des systèmes hybrides synthétisés, il était possible de capturer optiquement seulement les systèmes hybrides.

Une autre application intéressante de ces systèmes est d'accroître le domaine des

dimensions dans lequel il est possible de capturer les particules métalliques. En effet, il est connu que les nano-particules métalliques éprouvent une plus grande force optique que les particules diélectriques à cause de leur plus grand "volume" optique ou leur polarisabilité [13]. D'autre part les particules métalliques de l'ordre du micromètre éprouvent des difficultés pour être piégées du fait que les effets du transfert d'impulsion du photon associés à la réflexion sur la particule métallique deviennent dominants. Les systèmes métal-diélectrique peuvent permettre d'éliminer ou de réduire cette limitation et maintenir ainsi une grande polarisabilité. Celle-ci a été la motivation de travaux qui ont conduit à étudier et à comparer différents systèmes hybrides ou composites, formés par un coeur de silice et une enveloppe d'or ou d'argent de 1,05 et 1,4  $\mu m$  et de systèmes de 3,4  $\mu m$  dans lesquels seulement la moitié de la surface est couverte par une couche d'or [74]. Dans ces systèmes, on a étudié la force du piègeage pour un domaine de puissances variant entre 1 et 150 mW en utilisant un laser à saphir-titane fonctionnant à 760 nm.

#### 2.3.2 Alignement et rotation de micro-cristaux birégringents

Il est connu et est décrit par la théorie électromagnétique et la théorie quantique de la lumière, que la radiation électromagnétique peut induire un couple ("torque" en anglais) dans la matière avec laquelle elle interagit au prix du transfert du moment angulaire de la radiation incidente. Le faisceau laser est ainsi porteur d'un moment angulaire de deux manières différentes : le moment angulaire associé au spin du photon et lié à la polarisation, et le moment angulaire orbital, associé à la structure spatiale du faisceau [75]. Le transfert du moment angulaire se produit par des processus d'absorption ou de dispersion, processus au cours desquels toutes les composantes du moment angulaire peuvent être affectées. Diverses sont les voies par lesquelles on a pu produire un couple, en utilisant des matériaux absorbants [76], biréfringents [77], avec des formes diverses et intéressantes comme celles de structures ressemblant à de petits moulins à vent [78], ou en utilisant et adaptant de manière adéquate la structure et la polarisation du faisceau laser lui-même [79].

En 1936, Richard Beth, de l'Université de Princeton, a effectué une expérience pour détecter et mesurer le couple exercé par le rayonnement électromagnétique dans un milieu à double réfraction, jusqu'alors une force considérée comme très petite pour être expérimentalement détectée [80]. Beth observa la déviation d'une lame de quartz suspen-

due à une fibre très fine elle-même en quartz, sous l'influence du passage d'une lumière polarisée circulairement provenant d'un filament de tungstène. Il a obtenu des résultats qui s'accordent bien avec la théorie. Ainsi on a eu les premières observations expérimentales directes du couple qui résulte de l'interaction de la lumière polarisée avec des objets macroscopiques. D'autres développements ont postérieurement apporté des nouvelles preuves et il est suffisant de souligner ici les expériences d'Allen en 1966 qui ont montré que le couple résultant sur un dipôle dû à l'interaction avec la radiation circulairement polarisée augmente linéairement avec l'intensité de la lumière [81].

Depuis les premières expériences qu'a effectuées Ashkin pour mettre en lévitation des particules dans l'air, on a obtenu les premières preuves expérimentales qu'au moyen des pinces optiques, on pouvait produire la rotation de particules suite au transfert du moment angulaire [8]. Peu de temps ensuite, le couple optique affectant des sphères absorbantes maintenues en lévitation dans un piège optique a pu être calculé [82].

Le mécanisme le plus simple pour obtenir le transfert du moment angulaire est au moyen de l'absorption, où les particules "absorbent" aussi le moment angulaire de la lumière. Aussi bien le moment angulaire orbital que celui de spin ont été utilisés pour faire tourner des particules absorbantes. C'est le cas des expériences de Friese et de son groupe. Ils ont obtenu des vitesses de rotation entre 1 et 10 tours/seconde pour des particules absorbantes d'oxyde de cuivre de 1 et de 2  $\mu m$  de diamètre, mises en rotation grâce à un faisceau de structure hélicoïdale, dans un mode de Laguerre-Gauss avec différents états de polarisation, en renforçant ainsi les travaux d'Allen [83], qui avait auparavant démontré que ce type de faisceau possède un moment orbital angulaire bien défini [84–86]. Ces travaux ont montré que la vitesse de rotation des particules absorbantes recueillies dans un faisceau de lumière focalisé dépend de la polarisation de la lumière.

Il est cependant connu que l'absorption peut produire des effets de chauffage non souhaités pour l'efficacité du piègeage et cette conséquence restreint considérablement le domaine des applications pratiques, en particulier celui des applications biologiques. C'est pourquoi la génération de couples de rotation à partir d'autres effets peut s'avèrer très intéressante. Ces autres effets peuvent être associés à l'anisotropie externe ou interne des objets à manipuler. La forme des objets influence significativement l'orientation et la rotation de ceux-ci dans un piège optique, en établissant la préférence dans la diffusion de la lumière relativement aux axes principaux de la particule. Quelques études théoriques

suggèrent que quand l'axe du faisceau n'est pas aligné avec l'axe de symétrie de l'objet, on peut produire un couple qui fait tourner l'objet [87–91]. Il est aussi possible d'utiliser des pièges multiples pour induire la rotation dans des objets étendus. Quant à l'anisotropie interne, c'est le cas des objets biréfringents au travers desquels la lumière peut posséder différentes vitesses de propagation. Cette propriété singulière est responsable de ce que l'état de polarisation de la lumière qui traverse un cristal biréfringent puisse être modifié, ce qui se traduit aussi par les changements du moment angulaire affectant l'objet. Si la lumière qui influence l'objet biréfringent est polarisée circulairement, on peut induire une rotation continue qu'il est possible de contrôler avec une lame retardatrice  $\lambda/4$  et ainsi changer le sens de rotation des cristaux [92–94]. Les résultats expérimentaux montrent une dépendance linéaire de la vitesse de rotation avec la puissance laser [95].

Un problème plus spécifique est l'alignement des objets à des angles spécifiques, condition d'importance pour la fabrication de micro-structures. Il a été montré dans des expériences développées par Higurashi et d'autres, comment des microobjets biréfringents capturés optiquement sont alignés en suivant le vecteur du champ électrique quand le faisceau incident est polarisé linéairement [94–96]. Avec un faisceau gaussien à  $\lambda=1,064$  $\mu m$  et en mode  $TEM_{00}$  linéairement polarisé et une lame  $\lambda/2$ , pour faire tourner le plan de vibration du champ électrique, il est possible d'aligner de manière contrôlée des cristaux biréfringents grâce au transfert du moment angulaire de spin du faisceau incident. Dans ces travaux, il a été expérimentalement montré comment la direction de rotation du champ électrique dépend du retard qu'induit l'objet biréfringent. Il existe aussi des effets d'orientation observés qui sont associés à la forme des particules. Il est ainsi connu que les particules allongées tendent à être alignées de sorte que leur axe le plus long soit dans la direction de l'axe du faisceau qui génère le piège [9, 97], mais ces effets ont été peu étudiés cependant et les modèles ont été limités à des conditions dans lesquelles est valable l'approximation de l'optique géométrique [87]. On a récemment effectué des calculs numériques pour déterminer comment s'orientent des particules dans un piège et définir la dépendance de cette orientation selon la forme des objets. Dans ce travail, il est montré comment les particules allongées peuvent être orientées avec leur axe le plus long soit parallèlement ou perpendiculairement à l'axe du faisceau laser.

En utilisant des particules sphériques anisotropes de quartz, avec un faisceau linéairement polarisé et d'une puissance de  $10 \ mW$ , il est possible de faire tourner les micro-

cristaux avec une vitesse angulaire de  $200 \ rad/s$  et de produire un couple de centaines de pN.nm. Dans des situations plus complexes, certains de ces effets sont combinés [96].

Ce principe a ouvert une intéressante ligne de recherche en rapport avec la rotation induite optiquement de micromoteurs [98]. Des études récentes ont été menées pour améliorer la forme des objets et obtenir des micromoteurs plus puissants [91, 99–101]. L'induction de la rotation au moyen de la lumière présente l'avantage de ne pas avoir besoin de contacts métalliques ou de câbles pour fournir de l'énergie. Cependant aucune des méthodes pour produire des couples de rotation comme celles mentionnées ne peut être appliquée de manière générale. Le plus souhaité serait de trouver une technique non absorbante pour produire la rotation de particules sans aucune restriction particulière en utilisant un faisceau simple. C'est sur une telle idée qu'a travaillé le groupe de Rubinsztein-Dunlop, en montrant une méthode pour mettre en rotation des particules isotropes non absorbantes, d'une manière simple, capturées dans l'axe d'un faisceau gaussien en mode  $TEM_{00}$  et linéairement polarisé [102].

En conclusion de ce chapitre sur l'état de l'art des pinces optiques, on soulignera l'extrême vitalité de ce domaine de recherches. Et nous n'avons pas parlé de leur intérêt pour la manipulation des atomes ou des molécules!

# Chapitre 3 Considérations théoriques

# 3.1 Origine de la force de capture

Pour analyser comment la force optique générée dans un montage tel celui utilisé pour réaliser des pinces optiques peut induire la capture d'un objet, on doit prêter attention aux effets des forces de pression de radiation sur des particules microscopiques qui se manifestent à partir de différents phénomènes comme la réflexion, la réfraction ou l'absorption.

Pour une particule qui se trouve soumise à un champ de lumière laser fortement focalisée, les forces qui agissent sur elle peuvent être décomposées pour simplifier leur étude en deux composantes : les forces dites de gradient dirigées vers les régions où l'intensité de la lumière est la plus grande et les forces de dispersion dirigées dans la direction de propagation. Notons bien que cette séparation en deux forces est quelque peu artificielle puisque il faut garder bien clair à l'esprit que ces deux composantes sont le résultat d'un même phénomène de transfert global du moment cinétique linéaire de la lumière à la particule. Cependant, cette distinction entre forces de gradient et de diffusion est intuitivement simple et sous certaines conditions, largement vérifiées dans les situations pratiques, tout à fait correcte.

Pendant l'interaction entre la radiation laser et la particule, il se produit donc un transfert de moment cinétique. Chaque photon du faisceau de piégeage véhicule une énergie  $h\nu$  et une quantité de mouvement ou impulsion  $h/\lambda$ . La particule interagissante gagne de l'énergie et du moment cinétique à partir de la réflection, de la réfraction ou de l'absorption de photons. De façon simple, on pourrait dire que le moment du photon est "absorbé" par la particule. Un faisceau de lumière de puissance P produira une force donnée par l'équation :

$$F = Q \frac{n_m P}{c} \tag{3.1}$$

où  $n_m$  est l'indice de réfraction du milieu environnant et c la vitesse de la lumière

dans le vide. Le facteur Q est une quantité sans dimension qui exprime l'efficacité du transfert de moment cinétique de la lumière à la particule. Ce facteur Q dépend des paramètres du faisceau laser dans le piège, comme l'angle de convergence, les dimensions de la tache de focalisation, la longueur d'onde, l'état de polarisation, le profil du faisceau, mais aussi des propriétés optiques de l'objet capturé comme sa forme, ses dimensions, son indice de réfraction relatif par rapport au milieu environnant. Pour des valeurs typiques de P,  $n_m$  et Q, F est typiquement de l'ordre du picoNewton (pN).

La particule se trouve piégée de manière stable là où les forces de gradient et de dispersion s'équilibrent, pour autant que la force maximale de rappel dans le piège soit suffisante pour contrecarrer l'influence de la gravité et du poids de la particule, mais aussi la fluctuation thermique, cause du mouvemen brownien aléatoire de la particule. On peut aussi exprimer cette question de la stabilité du piège d'une autre manière en disant que pour que cette stabilité soit assurée, il est nécessaire que le temps de capture de la particule soit bien plus court que le temps caractéristique de la diffusion due au mouvement brownien qui pourrait permettre à la particule de sortir du piège.

Pour caractériser cette force de façon plus quantitative, il est utile et nécessaire de modéliser et d'analyser les situations particulières pour lesquelles les caractéristiques du rayonnement et des objets sont bien définies, ceci permettra de bien connaître l'influence de chaque paramètre et aidera à l'optimisation de la capture optique. Dans cette approche théorique, nous allons voir comment le calcul de la force optique sur une particule est relatif à ses dimensions en rapport avec la longueur d'onde de la lumière de piégeage.

# 3.2 Particules sphériques homogènes en champ gaussien

Bien que la théorie de la capture optique en toute généralité soit quelque chose d'extrêmement complexe, quelques modèles simples qui constituent une bonne approximation ont été développés.

Les forces produites par l'interaction des photons avec la matière peuvent être analysées dans le cadre de l'optique géométrique ("ray-optics" en anglais), des théories de la diffusion de la lumière à la limite de Rayleigh ou dans le cadre plus rigoureux de la théorie des ondes électromagnétique qui conduit à la diffusion de Mie. Le choix d'une description appropriée dépend essentiellement de la relation entre les dimensions de la particule et la longueur d'onde de la radiation de piégeage. Il faut cependant noter que la

longueur d'onde dépend du milieu dans lequel la lumière se propage. Ainsi pour des billes de 1  $\mu m$  de diamètre immergées dans de l'eau d'indice 1,33, il convient de comparer cette dimension non avec la longueur d'onde du laser de piégeage dans l'air, par exemple 1,064  $\mu m$ , mais à sa valeur dans l'eau, soit 1,064/1,33 = 0,8  $\mu m$ .

Les modèles les plus simplifiés permettent d'obtenir une première approximation des forces en considérant l'objet le plus simple, à savoir une sphère homogène parfaite en interaction avec un faisceau de lumière monochromatique gaussien.

#### 3.2.1 Régime de l'optique géométrique

Considérons d'abord le cas où le rayon de la particule est beaucoup plus grand que la longueur d'onde du laser utilisé pour le piégeage  $(r >> \lambda)$ . Dans ces conditions, les forces qui agissent sur la particule peuvent être explicitées en utilisant les descriptions de l'optique géométrique [103].

Dans cette approximation, le faisceau laser est décrit comme un ensemble de rayons de lumière individuels chacun avec une intensité propre. Si on ajoute la contribution de tous les rayons, on peut déterminer la force optique totale exercée sur la particule. Considérons un rayon de lumière voyageant au travers d'un milieu d'indice de réfraction  $n_m$  et qui est réfracté selon la loi de Snell-Descartes à la surface d'une particule diélectrique d'indice de réfraction  $n_s$ . Le faisceau de lumière sera également aussi réfracté en re-sortant de la particule. Les changements de direction dues à la réfraction sont cause de changements du moment cinétique associé aux rayons de lumière, et à chaque réfraction, une fraction de l'impulsion lumineuse est transmise à la sphère.

Dans la figure 3.1 sont représentées les forces qui agissent sur la particule transparente et la variation du moment cinétique linéaire. La première partie montre la particule dans la région du champ laser non focalisé. En considérant que le faisceau possède un gradient d'intensité, et que l'indice de réfraction de la particule est plus grand que celui du milieu, représentons deux rayons, dont l'épaisseur est proportionnelle à l'intensité de chacun d'eux. Quand les rayons sont réfractés, ils induisent une force de réaction sur la particule, force dirigée, à cause de la conservation du moment cinétique, dans la même direction, mais dans le sens opposé à celui du changement de moment associé aux rayons. Ce sont les forces  $F_1$  et  $F_2$  représentées en rouge sur la figure. En conséquence, le rayon le plus intense produira une force plus grande que le rayon moins intense. Ainsi, intuitive-

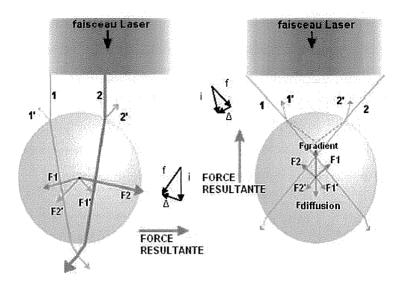


Fig. 3.1: Représentation de la capture d'une bille transparente dans le régime de l'optique géométrique. Dans le diagramme de vecteurs, on a représenté le changement du moment cinétique de la lumière pour le rayon le plus intense.

ment, il est facile de voir que la somme des contributions de tous les rayons donnera une résultante des forces dans la direction dans laquelle augmente l'intensité dans le faisceau de rayons, et la particule est ainsi poussée vers cette région. Cette force représente la force de gradient, associée au gradient d'intensité dans le faisceau.

De la même façon, les rayons qui sont simplement réfléchis à la surface de la sphère génèrent une force sur la particule qui sera dans la même direction mais en sens opposé au changement de moment. Ce sont les forces  $F_1'$  et  $F_2'$  représentées en bleu sur la figure. Les forces ainsi induites par la réflexion sont des forces de dispersion ou de diffusion qui tendent à pousser la particule vers l'avant, c'est-à-dire, dans la direction de propagation du faisceau.

Le cas schématisé sur la figure est celui d'une onde plane, mais maintenant, quand le faisceau est focalisé, il est important de noter que l'on a un nouveau gradient d'intensité tant dans la direction transversale que dans la direction axiale par rapport à la propagation du faisceau. Ainsi pour deux rayons réfractés qui traversent une sphère transparente localisée après le foyer, il appararait une force qui tend à attirer la particule vers le foyer, la région de plus forte intensité. Comme auparavant, les rayons réfléchis génèrent seulement une force de dispersion résultante dans la direction de propagation du faisceau, tendant

à pousser la particule vers l'avant.

Le piège est stable quand la force de gradient qui pousse la particule vers le foyer est suffisante pour contrecarrer la force de dispersion. Dans le cas contraire la particule est poussée hors du foyer dans la direction axiale.

Pour les sphères diélectriques transparentes avec des dimensions beaucoup plus grandes que la longueur d'onde, Askhin a établi les équations suivantes dans le régime de l'optique géométrique pour la force de gradient  $F_{grad}$ , dirigée le long d'une perpendiculaire à la direction du faisceau et la force de dispersion  $F_{disp}$ , dirigée le long de la direction de propagation de la lumière, respectivement [103]:

$$F_{grad} = \frac{n_m P}{c} \{ R \sin 2\theta - \frac{T^2 [\sin(2\theta - 2\epsilon) + R \sin 2\theta]}{1 + R^2 + 2R \cos 2\epsilon} \}$$
 (3.2)

$$F_{disp} = \frac{n_m P}{c} \{ 1 + R \cos 2\theta - \frac{T^2 [\cos(2\theta - 2\epsilon) + R \cos 2\theta]}{1 + R^2 + 2R \cos 2\epsilon} \}$$
 (3.3)

où  $n_m$  est l'indice de réfraction du milieu environnant, habituellement l'eau (c'està-dire  $n_m = 1,33$ ), P est la puissance du laser et c la célérité de la lumière dans le vide, Rest le coefficient de réflexion et T celui de transmission tel que T = 1-R pour les sphères non-absorbantes et  $\frac{n_m P}{c}$  est la valeur de la quantité de mouvement portée par les photons dans le faisceau. Les angles sont montrés dans la figure 3.2 pour une sphère diélectrique transparente de rayon r.

Pour obtenir l'expression complète des forces, il faut sommer sur tous les rayons pour toutes les réflexions et réfractions qui ont lieu, c'est-à-dire en prenant en compte tous les angles  $\theta$ . On remarquera que dans les expressions des forces de gradient et de dispersion, la dimension des particules n'intervient pas explicitement.

Les expressions d'Ashkin établies dans le cadre de l'optique géométrique ont bien la forme  $Qn_mP/c$  où Q est le facteur sans dimension d'efficacité du piège exprimé par les termes entre accolades des équations 3.2 et 3.3. On peut définir l'amplitude de la force totale par l'expression :

$$F_{totale} = (F_{grad}^2 + F_{disp}^2)^{0,5} (3.4)$$

à laquelle on associe le facteur d'efficacité  $Q_{total}$  tel que :

$$Q_{total} = (Q_{grad}^2 + Q_{disp}^2)^{0.5} (3.5)$$

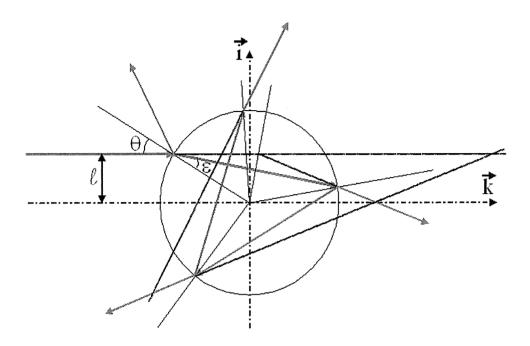


Fig. 3.2: Tracé des rayons selon les lois de l'optique géométrique au travers d'une bille diélectrique homogène transparente.

Ces expressions de Q permettent d'en évaluer l'importance en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$ . Pour une bille dans l'eau d'indice relatif de réfraction égal à 1,2, le facteur  $Q_{grad}$  atteint une valeur maximale d'environ 0,5 pour un angle d'incidence  $\theta$  égal à 70 degrés environ. On peut aussi étudier l'influence de l'indice de réfraction de la particule sur la valeur maximale atteinte par le facteur  $Q_{grad}$  et sur la valeur de  $Q_{disp}$ . En faisant ce calcul, on observe que  $Q_{disp}$  continue à croître relativement à la valeur maximale de  $Q_{grad}$  lorsque l'indice de réfraction augmente ce qui est indicatif de plus grandes difficultés pour obtenir des bons gradients de pièges efficaces aux indices élevés.

Nous verrons que cette conclusion obtenue dans ce régime de l'optique géométrique rejoint celles établies pour des particules dans le régime de Rayleigh comme nous allons le détailler au paragraphe suivant.

#### 3.2.2 Régime de Rayleigh

Dans le cas limite opposé lorsque le rayon de la particule est beaucoup plus petit que la longueur d'onde du faisceau laser  $(r << \lambda)$ , nous nous trouvons dans le régime de Rayleigh où la particule peut être considérée comme un dipôle ponctuel induit, dont

l'énergie est donnée par :

$$U = -\overrightarrow{p}.\overrightarrow{E} = -\alpha \overrightarrow{E}.\overrightarrow{E} \propto I \tag{3.6}$$

où  $\overrightarrow{p}$  est le moment dipolaire,  $\alpha$  la polarisabilité de la particule,  $\overrightarrow{E}$  le vecteur du champ électrique et I l'intensité lumineuse, proportionnelle au carré du champ. Comme la force est par définition égale au gradient de l'énergie  $-\nabla U$ , alors nous obtenons l'important résultat que la force est proportionnelle au gradient de l'intensité lumineuse [104].

Une autre façon d'obtenir cette expression est d'écrire directement l'expression de la force de Lorentz due au gradient d'intensité du champ. Cette force de Lorentz est donnée par :

$$F = (p.\nabla)E - \frac{\partial p}{\partial t} \times B = \alpha[(E.\nabla)E + \frac{\partial E}{\partial t} \times B]$$
 (3.7)

où  $p=\alpha E$  est le moment dipolaire comme nous l'avons déjà vu et  $\alpha$  la polarisabilité de la particule. Prenant en compte les règles de l'analyse vectorielle et les équations de Maxwell, on peut écrire :

$$(E.\nabla)E = \nabla(\frac{1}{2}E^2) - E \times (\nabla \times E) \qquad \nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t}$$
 (3.8)

Ainsi, l'expression pour la force devient :

$$F = \alpha \left[ \frac{1}{2} \nabla E^2 + \frac{\partial}{\partial t} (E \times B) \right]$$
 (3.9)

Le second terme de l'expression précédente est lié à la densité de puissance du flux lumineux, c'est-à-dire à la puissance par unité d'aire. Comme le laser utilisé pour induire le piège est continu et non à impulsions, alors  $\frac{\partial}{\partial t}(E \times B)=0$ , et la force moyenne s'écrit donc :

$$\langle F \rangle_{grad} = \frac{\alpha}{2} \nabla \langle E^2 \rangle$$
 (3.10)

où la polarisabilité pour une sphère est donnée par [105] :

$$\alpha = r^3 n_m^2 \frac{(m^2 - 1)}{(m^2 + 2)} \tag{3.11}$$

 $n_m$  est l'indice de réfraction du milieu environnant et m est l'indice de réfraction relatif donné par la relation  $m = n_s/n_m$  où  $n_s$  est l'indice de réfraction de la sphère. Notons que dans cette approximation, la force de gradient contribue au piégeage tant

dans la direction axiale que dans la direction latérale.

Pour évaluer l'influence des dimensions de la particule, nous analysons le cas de deux particules sphériques 1 et 2, d'égal indice de réfraction mais qui diffèrent seulement par leurs dimensions, telles que par exemple  $r_1 > r_2$ . La relation entre les forces de gradient à partir des équations 3.10 et 3.11 s'écrit donc :

$$\frac{F_{grad1}}{F_{grad2}} = \frac{r_1^3}{r_2^3} \tag{3.12}$$

Ce pourquoi il peut être conclu que pour deux particules sphériques de même indice qui diffèrent seulement par leur rayon, la force de gradient sera plus grande pour la particule de plus grand rayon, et elle variera comme le cube du facteur de proportionnalité entre les rayons. Par exemple, si une particule est deux fois plus grande qu'une autre  $(r_1=2r_2)$ , la force de gradient perçue par la particule la plus grande sera 8 fois plus grande.

Si maintenant on considère deux particules sphériques de rayons r égaux mais d'indices de réfraction distincts  $n_{s1}$  et  $n_{s2}$  respectivement, tels que  $n_{s1} > n_{s2}$ , des expressions précédentes 3.10 et 3.11, il peut facilement être déduit que :

$$\frac{F_{grad1}}{F_{grad2}} = \frac{n_{s1}^2 - n_m^2}{n_{s2}^2 - n_m^2} \times \frac{n_{s2}^2 + 2n_m^2}{n_{s1}^2 + 2n_m^2} = \frac{m_1^2 - 1}{m_2^2 - 1} \times \frac{m_2^2 + 2}{m_1^2 + 2}$$
(3.13)

Comme  $n_{s1} > n_{s2}$ , on a que pour d'égales conditions de puissance incidente, alors  $F_{grad1} > F_{grad2}$ . Nous pouvons conclure que pour deux particules sphériques qui diffèrent par la valeur de leur indice de réfraction, la force de gradient sera plus grande pour la particule de plus grand indice, et qu'elle sera d'autant de fois plus grande comme approximativement le carré du facteur de proportionnalité entre les indices de réfraction. Considérons par exemple le cas particulier d'une sphère de latex d'indice  $n_{latex} = 1,59$  et d'une sphère de silice d'égal rayon et d'indice  $n_{silice} = 1,45$ . Ces billes étant immergées dans l'eau d'indice  $n_{eau} = 1,33$ , les indices relatifs sont  $m_{latex} = 1,20$  et  $m_{silice} = 1,09$ . Dans cet exemple, la relation entre les forces de gradient sera donc :

$$\frac{F_{grad-latex}}{F_{grad-silice}} = 2,2 \tag{3.14}$$

On note donc que pour la particule de latex dont l'indice de réfraction vaut  $n_{latex}$ 

= 1,1  $n_{silice}$ , il en résultera une force de gradient telle que  $F_{grad-latex} = 2,2$   $F_{grad-silice}$ , soit une force environ deux fois plus forte pour des conditions de puissance incidente identiques. Ainsi, donc retenons la conclusion :  $F_{grad-latex} > F_{grad-silice}$ .

Analysons maintenant le cas de la force de dispersion due à la diffusion de la lumière par le dipôle. Pour une particule de Rayleigh d'indice de réfraction  $n_s$  plongée dans un milieu d'indice de réfraction  $n_m$ , la force de dispersion dans la direction de propagation est  $F_{disp} = n_m P_{disp}/c$ . En fonction de l'intensité incidente  $I_0$  et de l'indice de réfraction  $n_m$ , l'expression de la force de dispersion s'écrit [7] :

$$F_{disp} = \frac{n_m \sigma I_o}{c} \tag{3.15}$$

οù

$$\sigma = \frac{128\pi^5 r^6}{3\lambda^4} \frac{(m^2 - 1)^2}{(m^2 + 2)^2} \tag{3.16}$$

est la section efficace de diffusion pour une particule sphérique de rayon r et d'indice de réfraction relatif  $m=n_s/n_m$ .

Pour les mêmes situations types analysées précédemment pour les forces de gradient, considérons maintenant celui des forces de dispersion. Pour le cas de deux particules 1 et 2 de même indice mais de rayons différents, le rapport des forces de dispersion s'exprime par l'équation :

$$\frac{F_{disp1}}{F_{disp2}} = \frac{r_1^6}{r_2^6} \tag{3.17}$$

Dans ce cas, on note que pour deux particules sphériques de même indice qui diffèrent seulement par leur rayon, la force de dispersion sera plus grande pour la particule de plus grand rayon, et elle variera comme la sixième puissance du facteur de proportionnalité entre les rayons. Par exemple, si une particule est deux fois plus grande qu'une autre  $(r_1=2r_2)$ , la force de dispersion perçue par la particule la plus grande sera 64 fois plus grande.

On notera que les forces qui interviennent dans le piège optique sont affectées de manière différente par le changement de rayon des particules. La force de gradient augmente moins vite que la force de dispersion avec l'augmentation du rayon de la particule.

Dans le cas où les particules de même rayon diffèrent par leur indice de réfraction, les forces de dispersion sont également affectées. Reprenant l'exemple précédent des particules

de latex et de silice, la relation entre les forces de dispersion vaudra :

$$\frac{F_{disp-latex}}{F_{disp-silice}} = 4,8 \tag{3.18}$$

On remarque donc que pour la particule de latex dont l'indice de réfraction vaut  $n_{latex}=1,1$   $n_{silice}$ , il en résultera une force de dispersion telle que  $F_{disp-latex}=4,8$   $F_{disp-silice}$ , soit une force presque cinq fois plus forte pour des conditions de puissance incidente identiques. Ainsi, donc retenons la conclusion :  $F_{disp-latex}>F_{disp-silice}$ .

Comme nous avons vu, les forces qui interviennent dans le piège optique sont influencées de manière différente par l'indice de réfraction de la particule. Comme nous l'avons fait ressortir, la force de dispersion augmente plus vite que la force de gradient avec l'augmentation de l'indice de réfraction de la particule. L'augmentation de l'indice de réfraction ne constitue donc pas un réel avantage pour augmenter l'efficacité du piégeage optique.

Notons aussi que dans le régime de Rayleigh, la force de dispersion qui tend à pousser la particule vers l'avant augmente fortement avec le rayon de la particule, beaucoup plus que la force de gradient. Dans ces conditions, le piège optique devient moins stable pour des particules de plus grandes dimensions. Pour obtenir un critère de stabilité axiale du piège, le rapport de la force de gradient axiale à la force de dispersion doit être supérieur à l'unité pour la position correspondant au plus fort gradient d'intensité [8].

Le régime intermédiaire où les dimensions de la particule sont du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de la radiation incidente requiert un modèle plus compliqué.

#### 3.2.3 Régime de Lorenz-Mie

Une approximation générale consiste à résoudre numériquement les équations de Maxwell en utilisant la méthode des différences finies dans le domaine temporel ("Finite Difference Time Domain" en anglais ou méthode FDTD) ou encore une méthode par éléments finis ("Finite Element Method" en anglais ou méthode FEM) [106]. Ces méthodes sont relativement lentes car elles nécessitent de discrétiser le volume de la particule et d'une partie de son environnement.

La dispersion de l'onde plane par une particule sphérique peut être calculée dans le cadre de la théorie de Mie, prototype des théories de la diffusion. Elle a été originellement développée par Mie pour calculer le champ diffusé par une particule métallique sphérique parfaitement réfléchissante d'une onde plane monochromatique [31]. Ce calcul se complique considérablement quand il s'agit de calculer la dispersion d'un champ électromagnétique fortement focalisé.

D'autres méthodes ont été développées à partir de simplifications. Par exemple, Neto et col. [107] ont développé une théorie applicable à des particules sphériques. Ils ont utilisé une fonction intégrale du type Debye pour décrire le champ électromagnétique près du point de focalisation et la diffusion de Mie pour calculer la force sur une particule. Le formalisme de la matrice T (matrice de Transfer) a aussi été utilisé pour calculer les forces sur des particules anisotropes dans des faisceaux lasers focalisés [108]. Pour ce type d'approche théorique, nous recommandons les articles [109, 110] qui fournissent une base bibliographique particulièrement complète.

La réalisation de calculs dans ce domaine de l'électromagnétisme et des théories de la diffusion de la lumière exige une compétence particulière. Heureusement, des sous-routines pour MatLab sous forme d'une boîte à outils calculatoire pour pinces optiques ("optical tweezers toolbox") ont été mises à disposition et permettent d'effectuer des calculs modèles fondés sur la théorie de Lorenz-Mie et l'utilisation des algorithmes de la matrice T [108, 111].

Nous avons utilisé ces programmes afin d'établir une prédiction théorique sur les forces générées dans le cas de billes de latex aux dimensions que nous avons utilisées dans nos expériences. C'est l'application au cas le plus simple de billes homogènes sphériques dans un champ gaussien focalisé pour lequel la matrice T est diagonale, ce qu'elle n'est pas pour des particules non-sphériques. Le formalisme de la matrice T présente un grand intérêt en ce sens que cette matrice de transfert dépend seulement des propriétés de la particule, composition, dimension, forme, orientation et est largement indépendante du champ incident sauf de sa longueur d'onde.

Dans la figure 3.3, nous donnons le résultat du calcul pour des billes de latex de 100 nm, 1,1  $\mu m$  et 3,4  $\mu m$  de diamètre respectivement. Les graphes représentent l'évolution de l'efficacité Q du piège selon l'axe z longitudinal sur le côté gauche ou un axe transversal x ou y sur le côté droit. La position correspondant au point focal est à l'origine. On note que les courbes sont asymétriques le long de z et la position d'équilibre où la courbe intersecte la ligne horizontale des abcisses ne coïncide pas nécessairement avec le point focal. Une

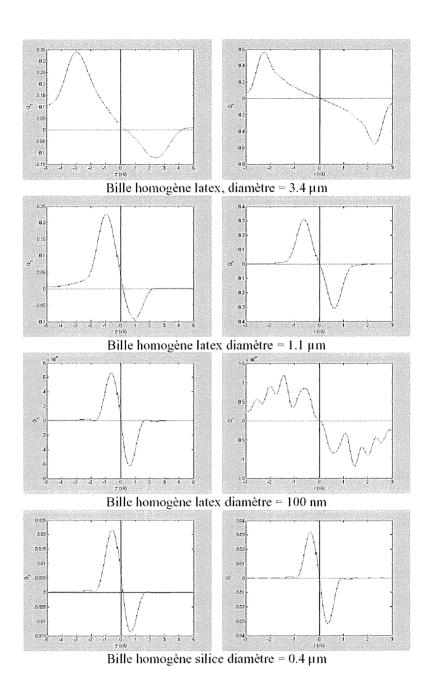


Fig. 3.3: Courbes des forces de dispersion et de gradient calculées dans la cadre de la théorie généralisée de Lorenz-Mie et de la matrice T. Les calculs ont été faits pour  $\lambda=1,064~\mu m$ , des billes dans l'eau  $n_m=1,33$  et un objectif d'ouverture numérique 1,25 dans le cas de billes de latex de 3,4  $\mu m$ , 1,1  $\mu m$ , 100 nm et d'une bille de silice de 400 nm de diamètre, présentés dans les graphes dans l'ordre, du haut vers le bas.

intersection en une abcisse négative (respectivement positive) sur l'axe horizontal indique une position avant (respectivement après) le point focal. Une force positive agit pour pousser la particule dans la direction de propagation du faisceau, une force négative agit pour piéger axialement la particule. Selon la coordonnée transversale, la symétrie de révolution du faisceau et de la bille conduisent comme attendu à une courbe parfaitement symétrique de part et d'autre de l'axe du faisceau. Si seules les forces optiques agissent sur la particule, celle ci restera au repos au point où la force est nulle, c'est-à-dire au point où la courbe croise la droite des abcisses avec un gradient négatif.

Enfin, pour terminer, il est bon de mentionner qu'il existe d'autres forces qui peuvent être présentes et qui agissent sur la particule piégée. Ainsi en est-il des fluctuations thermiques qui induisent le mouvement brownien. A ce propos, on peut noter que, quand il se produit une absorption de la lumière par la particule, même si elle est faible, il peut en résulter un échauffement la particule, donc de son environnement immédiat et une conséquence en sera un accroissement local des fluctuations thermiques.

# 3.3 Particules sphériques composites

Afin d'essayer de quantifier les changements attendus pour la force optique appliquée à des particules composites ou hybrides présentant une structure interne, nous avons développé une approche théorique qui s'appuie sur les cas limites du régime de l'optique géométrique ou du régime de Rayleigh.

Pour un colloïde métallique sphérique placé au centre d'une bille de silice, nous avons établi l'expression modifiée des composantes de la force optique dans le régime de l'optique géométrique en suivant une procédure équivalente à celle d'Ashkin. Cette expression est comme suit :

$$F_{grad} = \frac{n_m P}{c} \{ R \sin 2\theta - \frac{T^2 [\sin(2\theta - 2\epsilon + 2\gamma) + R \sin 2\theta]}{1 + R^2 + 2R \cos(2\epsilon - 2\gamma)} \}$$
(3.19)

$$F_{disp} = \frac{n_m P}{c} \{ 1 + R \cos 2\theta - \frac{T^2 [\cos(2\theta - 2\epsilon + 2\gamma) + R \cos 2\theta]}{1 + R^2 + 2R \cos(2\epsilon - 2\gamma)} \}$$
(3.20)

où on a introduit un nouvel angle  $\gamma$  qui tient compte de la réflexion des rayons sur la surface métallique considérée comme parfaitement réfléchissante. Cet angle  $\gamma$  apparaissant dans l'équation est montré sur la figure 3.4.

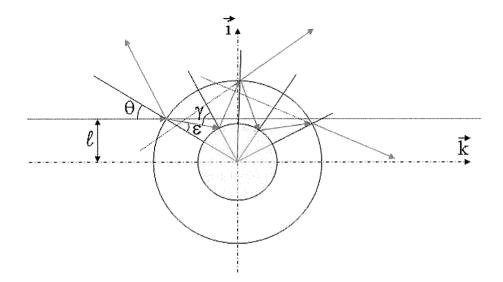


Fig. 3.4: Tracé des rayons selon les lois de l'optique géométrique au travers d'une bille composite présentant un cœur métallique parfaitement réfléchissant de rayon a en son centre.

On notera que cet angle n'existe que si la relation suivante est vérifiée :

$$\sin \gamma = -\frac{r}{a}\sin \epsilon = \frac{1}{n_m} \cdot \frac{\ell}{a} \tag{3.21}$$

où r et a sont le rayon de la sphère entière de diélectrique et du colloïde métallique respectivement. L'angle  $\gamma$  devient non significatif quand le rayon considéré est à une distance  $\ell$  de l'axe du faisceau plus grande que  $n_m a$ .

Cette équation que nous avons établie dans le régime de l'optique géométrique pour une sphère avec une inclusion concentrique en métal est en accord avec le résultat démontré récemment par Chang et al. pour le cas de structures à multiples couches concentriques sphériques [112].

Il est intéressant d'aller plus loin. Dans son article concernant l'approche de l'optique géométrique, Ashkin trace l'évolution de l'amplitude des efficacités Q telles qu'évaluées par ses équations 3.2 et 3.3 en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$  [103]. Pour effectuer ce calcul, il tient compte des formules de Fresnel pour introduire correctement les expressions des coefficients de réflexion R et de transmission T qui dépendent de la polarisation de la lumière. Nous avons reproduit ce calcul pour une bille de silice et de latex et nous le comparons avec les graphes similaires calculés à partir des équations 3.19 et 3.20 établies

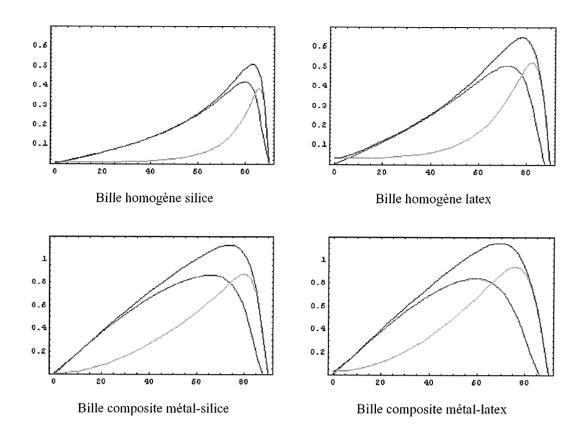


Fig. 3.5: Graphes représentant l'évolution des efficacités Q de piégeage en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$  sur une bille de silice pure, de polymère latex, composite métal-silice et composite métal-latex. Les courbes d'efficacité sont respectivement en rouge pour  $Q_{grad.}$ , en vert pour  $Q_{disp.}$  et en bleu pour  $Q_{total}$ .

dans notre travail pour des billes composites métal-silice et métal-latex avec un rapport du rayon a du cœur au rayon r total tel que a/r = 0.5 (Figure 3.5).

On note deux résultats importants issus de ce calcul. D'abord, les efficacités de piégeage sont augmentées par la présence d'un cœur métallique au centre de la bille diélectrique et cet accroissement est légèrement plus important dans le cas de sphères hybrides métal-silice que métal-latex. En comparant les efficacités totales  $Q_{total}$  à leur maximum, on obtient les rapports suivants :

$$Q_{m\acute{e}tal-silice} \sim 2, 2 \, Q_{silice} \, et \, Q_{m\acute{e}tal-latex} \sim 1, 8 \, Q_{latex}$$
 (3.22)

Le modèle développé dans le cadre de l'optique géométrique prédit donc un effet d'ac-

croissement par un facteur d'au moins 2 de la force optique associée avec la présence d'une partie métallique supposée parfaitement réfléchissante au cœur d'une sphère diélectrique.

Pour les sphères diélectriques transparentes avec des dimensions beaucoup plus petites que la longueur d'onde, rappelons les équations établies par Harada et Asukara [113] dans le régime de Rayleigh pour les forces de gradient et celles de dispersion respectivement, qui peuvent être re-écrites sous une forme plus compacte comme :

$$F_{grad} = \frac{\alpha}{2} \nabla \langle E^2 \rangle \tag{3.23}$$

$$F_{disp} = \frac{n_m \sigma \langle S \rangle}{c} \tag{3.24}$$

où  $n_m$  est l'indice de réfraction du milieu environnant,  $\langle S \rangle$  est le vecteur de Poynting moyenné dans le temps, c est la célérité de la lumière et  $\sigma$  est la section efficace de la particule.

Comme on l'a déjà dit, la force de gradient est due à la force de Lorentz agissant sur le dipôle induit par le champ électromagnétique de piégeage :

$$\overrightarrow{p}(\overrightarrow{r},t) = \alpha \overrightarrow{E}(\overrightarrow{r},t) \tag{3.25}$$

La polarisabilité  $\alpha$  est donnée par [105] :

$$\alpha = 4\pi\epsilon_m r^3 \frac{(\epsilon - \epsilon_m)}{(\epsilon + 2\epsilon_m)} \tag{3.26}$$

où  $\epsilon$  est la perméabilité de la particule et  $\epsilon_m$  celle du milieu environnant.

Pour les sphères diélectriques contenant une nanoparticle métallique concentrique dans le régime de Rayleigh, ces équations sont fondamentalement inchangées mais la différence est dans l'expression de la polarisabilité pour la particule hybride complexe. En nous appuyant sur les modèles développés au début du siècle dernier par Maxwell-Garnett [114] et par Bruggeman [115], nous pouvons définir une polarisabilité effective calculée avec l'équation suivante [17, 116] :

$$\alpha_{eff.} = 4\pi \epsilon_m r^3 \frac{(\epsilon_s - \epsilon_m)(\epsilon_c + 2\epsilon_s) + \Gamma(2\epsilon_s + \epsilon_m)(\epsilon_c - \epsilon_m)}{(\epsilon_s + 2\epsilon_m)(\epsilon_c + 2\epsilon_s) + 2\Gamma(\epsilon_s - \epsilon_m)(\epsilon_c - \epsilon_m)}$$
(3.27)

où  $\epsilon_c$ ,  $\epsilon_s$  et  $\epsilon_m$  sont les constantes diélectriques du cœur, de la coquille ("shell" en anglais) et du milieu environnant respectivement et où  $\Gamma = (\frac{a}{r})^3$  définit le rapport des volumes entre le noyau métallique et la sphère entière. De manière identique à l'équation 3.26, nous pouvons écrire la polarisabilité effective sous la forme :

$$\alpha_{eff.} = 4\pi \epsilon_m r^3 \frac{(\epsilon_{eff.} - \epsilon_m)}{(\epsilon_{eff.} + 2\epsilon_m)}$$
(3.28)

avec:

$$\epsilon_{eff.} = \epsilon_s \frac{\epsilon_c + 2\epsilon_s + 2\Gamma(\epsilon_c - \epsilon_s)}{\epsilon_c + 2\epsilon_s) - \Gamma(\epsilon_c - \epsilon_s)}$$
(3.29)

Une comparaison numérique entre la polarisabilité  $\alpha$  pour une sphère de silice et la polarisabilité effective  $\alpha_{eff}$ , pour une sphère composite or-silice avec un rapport des rayons  $\frac{a}{r}=0.5$ , c'est-à-dire,  $\Gamma=0.125$ , donne le taux suivant :

$$\alpha_{eff.} \sim 3,6 \,\alpha_{silice}$$
 (3.30)

avec les valeurs suivantes :  $\epsilon_m=1,78$  ( $n_m=1,33$ ) pour l'eau,  $\epsilon_s=2,10$  pour la silice ( $n_s=1,45$ ) et  $\epsilon_c=-50,8+i3,6$  pour le noyau d'or ( $n^*=0,25+i7,13$ ) à  $\lambda=1,047~\mu m$  [117].

Ce résultat est conforme au résultat de Chang et al. [118] pour des couches multiples concentriques dans le régime de Rayleigh. Cette augmentation de la polarisabilité due à la présence du noyau d'or est le facteur le plus responsable de l'augmentation de la force de piégeage dans le régime de Rayleigh [13].

Notons que le même calcul appliqué au cas d'une bille composite or-latex conduit au rapport suivant entre les polarisabilités :

$$\alpha_{eff.} \sim 2, 2 \, \alpha_{latex}$$
 (3.31)

en prenant en compte le changement de la valeur de la permitivité associée au latex, soit  $\epsilon_s = 2,53$  ( $n_s = 1,59$ ) et tous les autres paramètres restant inchangés. Nous retrouvons un même résultat que celui prédit également par l'optique géométrique, à savoir qu'une coquille de silice autour d'un cœur métallique procure un gain en effectivité du piège plus important qu'une coquille de polymère, bien que l'indice du polymère soit plus élevé que celui de la silice.

# 3.4 Particules non sphériques

La capture avec des pinces optiques d'objets avec une symétrie non sphérique ou totalement irréguliers a été observée et décrite dans la littérature. Le traitement théorique basé sur les modèles de la théorie de la diffusion dans le cas de ces géométries est très difficile. Quelques travaux ont développé des modèles basés sur l'optique géométrique des rayons. Ces modèles ont été appliqués aux géométries cylindrique, sous forme d'anneaux et aux dispositifs micromoteurs [87, 119, 120].

En général, pour résoudre le problème de la diffusion dans le cas de particules de formes diverses, on a recours à une solution numérique des équations de Maxwell. Des extensions de la théorie de la diffusion de Mie pour y inclure les systèmes sphéroïdes ont été développées [121]. La méthode de la matrice T a été beaucoup utilisée dans ces calculs parce qu'elle s'avère très efficace dans le cas de particules asymétriques. Quelques programmes qui implémentent cette technique sont disponibles gratuitement [122–124] et un résumé des techniques de calcul utiles pour résoudre le problème de la diffusion du champ électromagnétique pour des particules non sphériques a été publié [125]. Le point le plus intéressant en faveur de l'utilisation de ces théories de la diffusion pour le calcul des forces optiques est qu'elles s'appliquent et sont valides pour tout le domaine des dimensions des particules. En particulier, elles éliminent la difficulté du calcul des forces dans le régime intermédiaire pour lequel les dimensions des objets sont de l'ordre de la longueur d'onde de la radiation de piégeage.

La force exercée sur une particule capturée peut être évaluée s'il est possible de calculer le champ diffusé. Toutefois, dans beaucoup de cas, cela demeure impossible à cause de la méconnaissance des caractéristiques optiques précises des objets et du fait qu'il n'est pas possible de mesurer expérimentalement la totalité du champ diffusé. En effet, la collecte de toute la lumière diffusée par un objet asymétrique est pratiquement impossible dans une expérience de pinces optiques conventionnelle où le détecteur qui reçoit la lumière diffusée se limite à celle qui est dispersée soit vers l'avant ("forward scattering"), soit vers l'arrière ("backward scattering").

Un cas particulier pour nôtre intérêt est celui des objets asymétriques qui possèdent aussi une anisotropie interne comme c'est le cas des cristaux biréfringents que nous allons considérer dans le paragraphe suivant.

#### 3.4.1 Cas des cristaux biréfringents

Dans la majorité des études menées sur la propagation de la lumière dans un milieu, on suppose que ce dernier possède des propriétés d'isotropie optique, ce qui équivaut à dire que l'indice de réfraction ne dépend pas de la direction de propagation de la lumière dans le milieu. Toutefois, dans la nature il est aussi commun de trouver des milieux avec des propriétés physiques non isotropes. Les matériaux avec anisotropie optique ont un indice de réfraction qui dépend de la direction de propagation de la lumière et de sa polarisation. Ces matériaux sont connus comme biréfringents.

La biréfringence est une propriété intrinsèque du matériau qui dépend de sa structure cristalline, d'évidence pour les cristaux, des propriétés de symétrie de leur structure cristalline. Il est normalement nécessaire d'utiliser le calcul tensoriel pour décrire la propagation de la lumière dans un milieu biréfringent. Quelques notions relatives à la description des propriétés de la lumière dans un milieu anisotrope sont rappelées dans l'appendice B.

Dans la situation générale d'un milieu parfaitement anisotrope et dont les propriétés optiques nécessitent pour être correctement décrites la connaissance de trois indices de réfraction notés  $n_1$ ,  $n_2$  et  $n_3$ , la représentation géométrique du tenseur de permitivité diélectrique s'exprime, comme montré dans l'appendice B, par l'équation :

$$\frac{x_1^2}{n_1^2} + \frac{x_2^2}{n_2^2} + \frac{x_3^2}{n_2^2} = 1 {(3.32)}$$

Cette surface est connue comme l'ellipsoïde des indices. Elle décrit les propriétés des axes principaux et donne la valeur des indices de réfraction pour n'importe quelle direction de propagation dans le cristal (Figure 3.6). Cet ellipsoïde des indices reflète la symétrie cristalline. Dans le cas général, l'ellipsoïde est quelconque et le cristal est dit biaxial. Si le cristal possède une direction privilégiée associée à un axe de symétrie élevée, alors le cristal est dit uniaxial et l'ellipsoïde associé est un ellipsoïde de révolution autour de cet axe, appelé axe optique. Enfin, dans le cas où le cristal est de symétrie cubique ou pour un milieu isotrope, la surface des indices est alors une sphère.

Choisissons le système de coordonnées x y z de telle sorte qu'il coïncide avec les axes principaux du cristal. Considérons une onde plane monochromatique linéairement polarisée et se propageant le long d'un des axes optiques du cristal. Si l'onde se propage le long de l'axe z et si elle est linéairement polarisée dans la direction x (la même chose

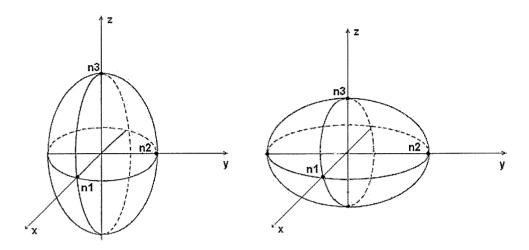


Fig. 3.6: Ellipsoïde des indices de réfraction, à gauche pour un cristal uniaxe positif selon z, à droite, pour un cristal uniaxe négatif selon z.

serait pour y) avec une vitesse de phase  $\frac{c_0}{n_1}$ , elle se propage sans changer sa polarisation et ressent un indice de réfraction  $n_1$ . Dans ce cas, le champ électrique a une seule composante  $E_1$  dans la direction x, et par conséquent, le vecteur D aussi :

$$D_1 = \epsilon_1 E_1 \tag{3.33}$$

Voyons maintenant le cas où l'onde se propage le long de l'axe z mais linéairement polarisée le long d'une direction arbitraire dans le plan x-y. Dans ce cas, les deux composantes polarisées respectivement selon x et y voyagent à des vitesses différentes  $\frac{c_0}{n_1}$  et  $\frac{c_0}{n_2}$  et elles éprouvent des changements différents de leur phase respective :

$$\varphi_x = n_1 k_0 d \quad et \quad \varphi_y = n_2 k_0 d \tag{3.34}$$

Ainsi, après avoir voyagé sur une distance d, le retard de phase accumulé sera :

$$\varphi = \varphi_y - \varphi_x = (n_2 - n_1)k_0d \tag{3.35}$$

Quand à la sortie du cristal les deux composantes seront à nouveau combinées, elles correspondront à une onde avec une polarisation elliptique (figure 3.7). La même analyse

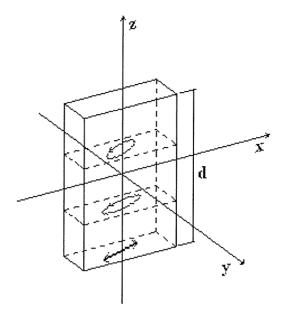


Fig. 3.7: Changement de la polarisation dû à la biréfringenc pour un faisceau de lumière se propageant de bas en haut le long de l'axe z.

est possible pour une onde plane qui se propage dans un cristal anisotrope selon une direction arbitraire.

Dans le cas spécifique d'un cristal uniaxial où l'onde voyage selon une direction formant un angle  $\theta$  avec l'axe optique, l'indice vu par l'onde s'écrit :

$$\frac{1}{n^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_0^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \tag{3.36}$$

où l'onde ordinaire voit l'indice de réfraction  $n_0$  et l'onde extraordinaire réagit à l'indice  $n(\theta)$  qui peut varier depuis  $n_0$  quand l'angle  $\theta = 0^0$  jusqu'à  $n_e$  quand  $\theta = 90^0$ .

En présence d'une symétrie cubique, on a  $n_x = n_y = n_z$ , ce qui signifie que du point de vue optique toutes les directions sont équivalentes et donc que le milieu se comporté comme un milieu isotrope. Dans ce cas, le tenseur de permitivité se réduit à un scalaire  $\epsilon$ , et les vecteurs  $\vec{E}$  et  $\vec{D}$  ont la même direction. Si le cristal a une certaine symétrie telle que  $n_x = n_y \neq n_z$ , on dit que le milieu est uniaxe. Les indices sont normalement dénotés comme  $n_x = n_y = n_o$ , et  $n_z = n_e$ , où  $n_o$  est appelé indice de réfraction ordinaire et  $n_e$ ,

indice de réfraction extraordinaire.

On dit que le cristal est uniaxe positif si  $n_e > n_o$  et uniaxe négatif si  $n_e < n_o$ . La direction associée à la composante  $n_z$  correspond à celle de l'axe optique du matériau, qui n'est autre que la direction correspondant à celle de l'axe cristallin de plus haute symétrie. Si les trois valeurs sont différentes, c'est-à-dire si  $n_x \neq n_y \neq n_z$ , nous sommes alors en présence d'un milieu dit biaxe.

# 3.5 Influence des propriétés du champ lumineux

La description la plus simple possible pour caractériser les forces d'un piège optique s'obtient quand on considère des particules sphériques qui n'introduisent pas d'anisotropie et quand le profil transversal du faisceau laser est gaussien. Dans la majorité des cas, on ne tient pas compte des caractéristiques du faisceau laser au foyer comme dans l'approximation de l'optique des rayons développée par Ashkin [103] et par Roosen [126]. La théorie électromagnétique peut permettre un traitement correct du champ au foyer mais elle requiert beaucoup de calculs pour le cas de particules plus grandes que la longueur d'onde de la radiation. D'autre part la théorie développée par Visscher et Brakenhoff réussit pour le cas de la diffusion de Rayleigh et de Mie mais elle n'est pas applicable dans le régime intermédiaire [127, 128]. Il a aussi été élaboré une théorie submicroscopique complète qui dépasse les approximations précédentes et qui est également applicable dans le régime intermédiaire [129].

Le problème d'intérêt pour les pinces optiques requiert qu'on considère le fait que le faisceau laser de capture est généralement fortement focalisé. Ceci exige des modifications dans les approximations des modèles. Ce faisceau fortement focalisé peut parfaitement être décrit dans le cadre de la théorie des faisceaux gaussiens. Ce faisceau est caractérisé par 4 paramètres fondamentaux : la longueur d'onde  $\lambda$ , le rayon  $w_0$  au "waist" <sup>3</sup> du faisceau, l'intensité  $I_0$  au foyer et l'état de polarisation. Quelques travaux importants ont développé la théorie pertinente pour le cas de faisceaux gaussiens fortement focalisés [130–133].

 $<sup>^3\</sup>mathrm{Le}$  "waist" d'un faisceau focalisé correspond au point sur son trajet où le front d'onde est plan.

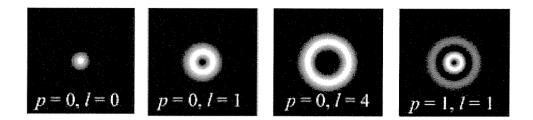


Fig. 3.8: Profils spatiaux transversaux de faisceaux LG pour différentes valeurs des indices l et p.

#### 3.5.1 Particules sphériques dans un champ non gaussien

En particuler, les faisceaux de structure spatiale Laguerre-Gauss (LG) ont des modes de symétrie circulaire dénotés conventionnellement  $LG_p^l$ , où l et p sont des nombres entiers qui décrivent le mode : l est l'indice azimutal qui définit le nombre de cycles complets de phase  $2\pi$  accomplis autour de la circonférence du mode et p+1 donne le nombre de nœuds radiaux du profil comme on peut le voir sur quelques exemples montrés dans la figure 3.8. Les cas particuliers pour lesquels  $l\neq 0$  sont intéressants puisqu'ils correspondent à un front d'onde hélicoïdal et à un moment angulaire orbital bien défini.

Il existe différentes méthodes pour générer ce type de faisceaux, comme par exemple l'utilisation d'une lame de phase spirale [134], de modulateurs spatiaux de lumière SLM en combinaison avec des techniques holographiques [135–137], la formation d'un faisceau (LG) dans la propre cavité d'un résonateur laser [138] ou en utilisant un convertiseur de mode pour transformer un faisceau Hermite-Gauss en un faisceau Laguerre-Gauss [139].

Une caractéristique de cette famille de faisceaux utilisé pour la capture optique est due au fait que, à cause même de la forme du faisceau, il n'y a pas de composantes de dispersion au centre du piège où l'intensité axiale du faisceau est réduite. Ceci a pour conséquence que la force de dispersion axiale due à la pression de radiation est ainsi fortement réduite [140].

Les faisceaux de modes LG ont été utilisés avec succès pour capturer des particules d'indice de réfraction plus faible que celui du milieu environnant, ce qui est le cas de bulles de gaz au sein d'un liquide. Dans un faisceaux gaussien, de telles particules seraient repoussées vers les régions de faible intensité et donc éjectées du faisceau. Par contre, la

configuration spatiale d'un faisecau LG est bien plus favorable pour les confiner au centre du faisceau. Egalement, les modes LG sont plus avantageux pour piéger des particules ayant une réflectivité élevée comme les particules métalliques pour lesquelles l'augmentation des forces de dispersion est défavorable [141]. En effet, un faisceau LG conduit pour ces particules métalliques à une situation plus favorable due à la particularité que le piège se construit grâce au fait qu'elles réfléchissent la lumière de l'anneau lumineux de sorte que les forces de dispersion exercées par tout le tour des parois de l'anneau maintiennent la particule capturée dans une situation stable.

Un autre avantage des faisceaux LG est qu'à cause de leur moment angulaire orbital bien défini par leur phase azimutale, ces faisceaux peuvent transférer efficacement un moment angulaire à des particules et induire un couple rotationnel capable de les mettre en rotation [85].

#### 3.5.2 Influence de l'état de polarisation de la lumière

Quelques développements utilisant le cadre de l'optique géométrique ont tenu en compte la polarisation du faisceau laser [132, 142, 143]. L'étude la plus complète est basée sur une combinaison de l'optique des rayons et de celles ondes [129]. Cette théorie aboutit à des résultats qualitativement prédits par la théorie électromagnétique, mais en permettant des estimations quantitatives pour des particules couvrant un domaine de dimensions de  $\lambda/3 \le r \ge 5\lambda$  pour lequel la théorie électromagnétique devient très compliquée. Ce modèle prend bien en considération la forme et la polarisation du faisceau.

Comme résultat de ces études, l'influence de la polarisation du faisceau de piégeage sur la force exercée par la pince optique peut être caractérisée. Le calcul réalisé établit que la force axiale exercée le long de la direction de propagation du faisceau ne dépend pas de l'état de polarisation du laser. D'un autre côté, les forces latérales respectivement parallèle  $F_{lateral,p}$  et perpendiculaire  $F_{lateral,s}$  à la polarisation du faisceau incident ont été calculées en fonction de la distance de la particule à l'axe du faisceau, et cela pour des particules de différentes dimensions comme montré sur la figure 3.9.

Selon ce calcul, il est prédit que la force latérale parallèle à la polarisation est toujours plus grande que la force latérale perpendiculaire d'environ 10 % et que les deux croissent avec l'augmentation de la dimension de la bille.

Une situation plus compliquée à analyser concernant la polarisation est lorsqu'on

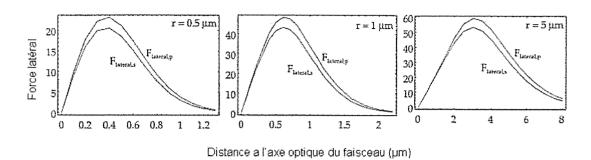


Fig. 3.9: Calcul des forces latérales respectivement parallèle et perpendiculaire à la polarisation du faisceau incident pour des billes de latex de 0,5, 1,0 et 5,0  $\mu m$  de rayon.

considère un faisceau fortement focalisé. Dans ces circonstances, l'état de polarisation de la lumière varie dans la région focale. Dans ce régime, le recours à une théorie scalaire pour décrire le champ au point focal est inapropriée [144], bien qu'une théorie vectorielle correcte n'existe pas encore.

Des travaux récents ont expérimentalement démontré qu'une lumière polarisée radialement peut être focalisée en une tache beaucoup plus petite que celle que l'on peut normalement obtenir avec une lumière simplement linéairement polarisée [145, 146], ce qui prouve que l'état de polarisation peut influer sur les dimensions de la tache au point de focalisation. De ces mêmes travaux, il a été obtenu des résultats concernant l'influence de la direction de la polarisation linéaire sur la forme de la tache, en particulier l'observation d'un effet d'allongement du faisceau incident dans la direction de la polarisation [147]. Plusieurs travaux théoriques prenant en compte les propriétés vectorielles du champ électromagnétique résument les études sur la distribution du champ dans un faisceau linéairement polarisé fortement focalisé [148–151]. D'autres travaux récents intéressants rapportent l'apparition d'une polarisation dans un faisceau non polarisé fortement focalisé et sur l'étude du degré de polarisation d'un champ électromagnétique aléatoire [152–154], aboutissant à la première démonstration expérimentale du fait qu'il soit possible de modifier l'état de polarisation de la lumière avec un objectif de microscope.

#### 3.5.3 Couple de rotation induit par la lumière

Nous avons vu auparavant comment la lumière peut transférer une quantité de mouvement à un objet matériel. Nous voyons maintenant comment elle peut transférer

un moment angulaire capable d'induire un couple de rotation sur un objet capturé.

Le moment angulaire porté par la lumière peut être caractérisé comme un moment angulaire de spin associé à la polarisation [80] et par un moment angulaire orbital associé à la distribution spatiale du front d'onde [76, 83]. De fait, le couple correspondant peut s'exprimer sous la forme :

$$\tau_{total} = \tau_{orbital} + \tau_{spin} \tag{3.37}$$

Alors que le moment angulaire d'une lumière linéairement polarisée est nul, une lumière circulairement polarisée possède un moment angulaire de spin donné par  $\pm \sigma \hbar$  pour chaque photon avec  $\sigma =$  -1 ou +1 selon que la lumière est polarisée circulaire droite ou circulaire gauche.

Le moment angulaire orbital peut être créé par une structure spatiale particulière du front d'onde, comme par exemple celle d'une forme hélicoïdale associée à un mode spatial d'un faisceau de type Laguerre-Gauss (LG) qui possède un moment angulaire orbital donné par  $l\hbar$  pour chaque photon, où l est l'indice azimutal du faisceau. Dans ces conditions, le moment angulaire total sera  $L = (l+\sigma)\hbar$  pour chaque photon.

Ce moment angulaire peut être transféré à des particules absorbantes et cette absorption peut résulter en une rotation de la particule. Par exemple, il a été observé la rotation d'une particule d'un oxyde métallique piégée dans la zone centrale obscure d'un faisceau annulaire LG linéairement polarisé. Dans ce cas, la rotation est uniquement due à la structure hélicoïdale du front d'onde. La vitesse de rotation peut alors être augmentée ou diminuée si on modifie l'état de polarisation du faisceau en introduisant un moment angulaire de spin [76].

Nous avons déjà considéré le cas d'un cristal biréfringent où une onde se propage le long de l'axe z mais est linéairement polarisée le long d'une direction  $\theta$  arbitraire dans le plan (x,y). Quand la lumière linéairement polarisée qui transporte un moment angulaire nul est transmise au travers d'un objet biréfringent, la lumière transmise se retrouve généralement elliptiquement polarisée. Cette lumière porte alors un moment angulaire de spin. Suite à la conservation du moment angulaire, l'objet acquiert alors un moment angulaire et éprouve un couple de rotation selon l'axe z dans le sens contraire à la polarisation elliptique résultante. Suite à ce couple, l'objet tourne jusqu'à ce que son axe x ou y coïncide avec le plan de vibration du champ électrique. A ce moment, dans cette orientation, l'objet biréfringent ne change plus l'état de polarisation de la lumière

incidente et par conséquent cesse de ressentir le couple. Ainsi l'objet est angulairement aligné, mais si la lumière incidente est elliptiquement polarisée, alors la rotation de la particule biréfringente sera continue.

De manière générale, pour une lumière elliptiquement polarisée incidente sur un matériau biréfringent, le champ E peut être exprimé sous la forme :

$$E = E_o \exp^{i\omega t} (\cos\phi \cos\theta - i\sin\phi \sin\theta)\hat{i} + E_o \exp^{i\omega t} (\cos\phi \sin\theta + i\sin\phi \cos\theta)\hat{j}$$
 (3.38)

où le premier terme de l'équation représente la composante parallèle à l'axe optique du cristal et le second terme, la composante perpendiculaire. L'angle  $\theta$  représente l'angle entre l'axe rapide de la lame cristalline  $\lambda/4$  que génère l'ellipiticité de l'onde incidente et l'axe optique du cristal. L'angle  $\phi$  décrit le degré d'ellipticité de la lumière. La différence de phase produite à la traversée du matériau d'épaisseur d et d'indice de réfraction n pour cette direction de propagation dans le cristal est donnée par kdn où k est le vecteur d'onde. Le champ électrique de la lumière émergente sera :

$$E = E_o \exp^{i\omega t} \exp^{ikdn_e} (\cos\phi \cos\theta - i\sin\phi \sin\theta) \hat{i} + E_o \exp^{i\omega t} \exp^{ikdn_o} (\cos\phi \sin\theta + i\sin\phi \cos\theta) \hat{j}$$
(3.39)

où  $n_o$  et  $n_e$  sont les indices ordinaire er extraordinaire du cristal biréfringent.

L'expression du moment angulaire de la lumière incidente peut être déterminée à partir de la relation de E et de son complexe conjugué  $E^*$ . Finalement, l'expression du couple induit par le passage du faisceau à travers l'objet biréfringent est donnée par :

$$\tau = -\frac{\epsilon}{2\omega} E_o^2 \sin(kd(n_o - n_e)) \cos 2\phi \sin 2\theta + \frac{\epsilon}{2\omega} E_o^2 (1 - \cos(kd(n_o - n_e)) \sin 2\phi$$
 (3.40)

où  $\epsilon$  est la permitivité du milieu et  $\omega$  la fréquence angulaire de la lumière incidente.

Le premier terme de l'expression du couple est dû à la composante plan polarisée de la lumière et le second terme est dû au changement de polarisation au passage à travers le matériau. Pour une puissance donnée du laser et un certain degré d'ellipticité, le second terme de l'équation aura une valeur constante qui deviendra maximale quand la polarisation sera circulaire, auquel cas le premier terme pourra être considéré comme négligeable. Par exemple, pour une lumière linéairement polarisée telle que  $\phi=0$  ou  $\frac{\pi}{2}$ , le couple est proportionnel à  $\sin 2\theta$ , et l'objet ressentira un couple pour autant que  $\theta$  soit

différent de zéro et c'est la situation où l'axe rapide du cristal s'aligne avec le plan de polarisation.

D'un autre côté, un objet asymétrique induira une diffusion asymétrique de la lumière incidente qui pourra être cause de l'apparition d'un couple de rotation. Dans ce cas, la rotation de l'objet est le résultat de l'action de la pression de radiation sur un objet qui n'est pas symétrique par rapport à l'axe du faisceau et le couple est induit par une action différenciée des forces de gradient et de dispersion selon les facettes asymétriques de la particule. Des travaux de Gauthier décrivent un modèle élaboré dans le cadre de l'optique géométrique et des développements numériques pour décrire le couple résultant sur des objets de formes variées [99, 119]. En nous basant sur ce type de description, nous pouvons considérer la cas d'un objet allongé selon son axe z et qui est asymétrique selon ses axes x et y. Selon ce modèle, les photons qui seront réfractés ou réfléchis sur les surfaces supérieure et inférieure de l'objet ne contribueront pas à un couple de rotation selon z, tandis que ceux qui seront réfractés ou réfléchis par les parois latérales induiront une force perpendiculaire aux parois d'incidence. Le produit vectoriel entre le vecteur radial qui va du centre de l'objet au point d'incidence et le vecteur de la force normal à la surface d'incidence produit un couple autour de z. Ainsi, dans cette situation, pour un faisceau se propageant selon z, le mouvement de rotation sera induit par la seule asymétrie de l'objet.

Le nombre de photons incidents par seconde sur un élément d'aire dA de la surface de l'objet est donné par :

$$N = \frac{I(x, y, z)}{E_{photon}} dA \tag{3.41}$$

où I(x,y,z) est l'intensité locale du faisceau et  $E_{photon}=hc/\lambda_0$  est l'énergie de chaque photon. Pour un profil de mode gaussien, l'intensité peut s'écrire :

$$I(x,y) = \frac{2P}{\pi(W_z^2)} \exp(\frac{-2(x^2 + y^2)}{W_z^2})$$
 (3.42)

où P est la puissance incidente et  $W_z$  la taille au "waist" du faisceau à la distance z.

La fraction de photons qui est transmise ou réfléchie par la surface est déterminée

par les coefficients moyens de Fresnel:

$$R = |R_{\perp}^2 + R_{\parallel}^2|/2 \quad T = 1 - R \tag{3.43}$$

L'élément de force au point d'interaction est :

$$dF = NdP_{photon} (3.44)$$

où  $dP_{photon}$  est la contribution au moment d'un photon qui peut être exprimée par :

$$dP \parallel = 0$$
  $dP \perp = \frac{h}{\lambda} T \sin(\theta) [n_m \cos(\theta) - n_o \cos \psi]$  (3.45)

où  $\theta$  et  $\psi$  sont les angles d'incidence et de réfraction respectivement et  $n_m$  et  $n_o$ , les indices de réfraction du milieu et de l'objet.

Finalement, l'élément du couple au point d'interaction  $r(x_i, y_i, z_i)$  est donné par :

$$d\tau = rXdF \tag{3.46}$$

La somme de toutes les composantes donne le couple total appliqué à l'objet.

Il est possible de décrire le cas particulier d'un objet asymétrique, non biréfringent, orienté par le couple induit grâce à l'anisotropie de la diffusion d'un faisceau linéairement polarisé [155]. Les caractéristiques du piège créé par la lumière linéairement polarisée ont déjà été commentées dans le paragraphe 3.5.2. Le couple d'orientation peut être calculé en supposant qu'il est le résultat de la dépendance de la réflexion et de la transmission de la lumière sur la superficie de l'objet avec la polarisation telle que décrite par les formules de Fresnel:

$$R \perp = -\frac{\sin(\theta - \psi)}{\sin(\theta + \psi)} \qquad \qquad T \perp = \frac{2\sin\psi\cos\theta}{\sin(\theta + \psi)}$$
(3.47)

$$R \perp = -\frac{\sin(\theta - \psi)}{\sin(\theta + \psi)} \qquad T \perp = \frac{2\sin\psi\cos\theta}{\sin(\theta + \psi)}$$

$$R \parallel = \frac{\tan(\theta - \psi)}{\tan(\theta + \psi)} \qquad T \parallel = \frac{2\sin\psi\cos\theta}{\sin(\theta + \psi)\cos(\theta - \psi)}$$
(3.47)

Ces coefficients représentent la dépendance de l'amplitude du champ électrique avec la direction de la polarisation, parallèle ou perpendiculaire au plan d'incidence. Les angles  $\theta$  et  $\psi$  représent ent les angles d'incidence et de réfraction respectivement.

Enfin, on peut aussi rapporter un dernier mécanisme selon lequel une particule piégée peut être mise en mouvement et en rotation par un piège mobile de telle sorte que la particule soit contrainte à suivre les mouvements du piège dans une quête permanente de la région de plus forte intensité du champ lumineux. Ce résultat a été obtenu en particulier en utilisant une ouverture de forme déterminée et mise en rotation, modifiant ainsi en permanence les gradients d'intensité dans le piège [156, 157]. Un résultat similaire a été également obtenu avec des moyens un peu plus sophistiqués à l'aide d'un modulateur spatial de lumière [158].

# Chapitre 4 Développements expérimentaux

# 4.1 Description générale d'un montage de pinces optiques

Un système de pinces optiques peut être monté à partir de composants isolés ou en utilisant un microscope optique conventionnel. Bien qu'il existe des systèmes commerciaux [159], ils ne sont pas comparables aux occasions qu'offre la construction d'un système propre, adapté aux objets et aux phénomènes que l'on souhaite manipuler et étudier. Comme nous l'avons commenté précédemment, il est tout simplement possible d'obtenir un piège optique avec un système formé par un laser avec une longueur onde et une puissance appropriées, focalisé par une lentille de grande ouverture numérique (typiquement, un objectif de microscope). Bien sûr, savoir si l'on a besoin d'un système de pinces optiques dépend beaucoup du type d'études qui vont être développées ou de l'application spécifique pour laquelle on souhaite le construire. Cependant nous commencerons par décrire un système de pinces optiques conventionnel pour la manipulation d'un seul piège et nous décrirons les adaptations qu'il peut requerrir pour l'utiliser dans certaines applications d'importance spécifique.

#### 4.1.1 Montages avec un seul piège

Comme le microscope optique offre une série d'avantages, par le fait même qu'il possède une optique calibrée et bien adaptée pour l'obtention d'images, nous allons considérer un montage de pinces optiques basé sur l'utilisation et l'adaptation d'un microscope optique.

Il faut savoir si le microscope dispose ou non d'une optique adaptée à l'infini. Aujourd'hui, la grande majorité des microscopes actuels sont construits de telle sorte qu'ils soient adaptés à l'infini. Mais, si on utilise un microscope plus ancien, ce n'est peut-être pas le cas. L'avantage de l'adaptation de l'optique à l'infini est que la distance entre l'objectif et l'oculaire ou le système d'imagerie (caméra CCD par exemple) n'a plus d'im-

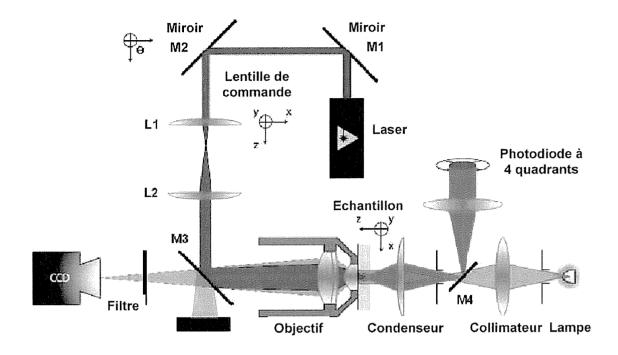


Fig. 4.1: Schéma de base d'un montage typique de pinces optiques.

portance. Il est alors aussi possible d'interposer différents éléments optiques comme des lames dichroïques, des filtres, etc. sur le trajet du faisceau traversant le microscope après l'objectif sans détériorer l'image par des aberrations intempestives.

Le microscope optique avec une configuration inversée est le plus utilisé dans les montages de pinces optiques notamment destinés aux application biologiques. Dans ces microscopes, à cause de l'adaptation à l'infini de l'objectif, il est possible de déplacer l'objectif et ainsi de maintenir fixe la table support de l'objet, ce qui favorise la stabilité du piège. Comme il est bon de le répéter, c'est en outre le microscope d'excellence pour les applications biologiques.

La figure 4.1 montre un montage standard de pinces optiques, basé sur l'adaptation d'un microscope optique inversé. Le premier élément important du montage est la source de lumière laser. Il existe certaines caractéristiques du laser qui les rendent plus favorables pour leur usage en piègeage optique, comme par exemple : une grande stabilité en intensité, c'est à dire de très faibles fluctuations en puissance, une excellente stabilité de pointé, la possibilité de fournir une puissance élevée si nécessaire et un mode spatial bien caractérisé en sortie, le plus souvent un mode  $TEM_{00}$ , propre à un faisceau gaussien où le maximum

Tab. 4.1: Lasers utilisables pour un montage de pinces optiques sous microscope. L'astérisque (\*) identifie les lasers que nous avons utilisés occasionnellement.

Laser	Longueur d'onde $(nm)$	Puissance $(W)$	Autres caractéristiques
HeNe (*) Ar ionisé Nd: YAG doublé (*) Nd: YAG Nd: YLF Fibre dopée Yb (*) Colorant Diode semicond. Saphir: Ti (*) Saphir: Ti (*)	633 488, 514 532 1064, 1320 1047, 1053 1060-1100 560-680 470, 640, 780, 830, 980 700-1100 750-950	0,1-0,2 0,1-2 0,1-2 0,5-20 1-5 1-5 0,1-1 0,05-0,2 0,2-1 0,2-1	continu $TEM_{00}$ , polarisé continu continu continu continu $TEM_{00}$ , polarisé continu $TEM_{00}$ , polarisé continu $TEM_{00}$ , collimaté continu continu continu continu polarisé impulsions 80 fs

d'intensité est au centre du faisceau.

Dans le tableau 4.1, nous avons rassemblé quelques lasers utilisés ou utilisables en précisant leurs caractéristiques les plus importantes. Il faut tenir compte du fait que le choix adéquat de la source laser dépend largement de l'application principale à laquelle le montage est destiné. Par exemple, pour les applications en biologie, il est recommandé d'utiliser une source laser dans l'infrarouge ou le proche infrarouge, c'est-à-dire à une longueur d'onde peu sensible à l'absorption par l'eau et qui présente un moindre danger létal pour la survie des cellules ou des organites cellulaires.

Le laser de piégeage est guidé par l'intermédiaire de deux miroirs  $M_1$  et  $M_2$  comme montré sur la figure 4.1, vers l'entrée postérieure de l'objectif. Ces miroirs ne sont pas indispensables mais ont la fonction de faciliter le processus d'alignement du faisceau. Une condition d'importance est que le diamètre du faisceau soit adapté de telle sorte que la pupille d'entrée de l'objectif soit totalement couverte, ceci assure que le faisceau sera focalisé à la limite de diffraction et qu'en conséquence le gradient d'intensité dans la région de focalisation sera le plus grand.

Si le diamètre du faisceau à l'entrée de l'objectif est plus petit que le diamètre de la pupille de celui-ci, l'angle du cône de la lumière focalisée sera plus petit que si la pupille d'entrée est totalement couverte. L'ouverture numérique est en conséquence diminuée et la dimension de la tache de focalisation est augmentée.

Dans le cas où le diamètre du faisceau est plus grand que l'entrée de l'objectif, alors l'ouverture numérique sera certes optimisée mais au prix d'une certaine perte d'intensité de la lumière, puisque tout le faisceau ne pourra être transmis au travers de l'objectif.

Pour remplir le critère que le faisceau couvre complètement l'entrée postérieure de l'objectif, on utilise habituellement un expanseur de faisceau qui consiste en un télescope de Képler constitué de deux lentilles convergentes  $L_1$  et  $L_2$ . Cette paire de lentilles est placée à une distance qui correspond à la somme des distances focales des lentilles. Le rapport des diamètres du faisceau entre l'entrée et la sortie du télescope de Képler est égal au rapport des distances focales des lentilles qui le constitue. En pratique cependant, il est nécessaire de respecter que le rapport d'amplification ne puisse jamais être beaucoup plus grand que 8:1 pour éviter d'introduire des aberrations géométriques gênantes. Au cas où on aurait besoin d'une taille du faisceau plus grande que celle fournie par un télescope réglé avec un rapport 8:1, il est recommandé d'utiliser deux expanseurs indépendants successifs.

Il est aussi important de prêter attention à la précision de la distance entre les lentilles. En effet, si la distance n'est pas précisement la somme des focales, mais a une valeur inférieure, la lumière qui émergera après la seconde lentille sera divergente, ou si au contraire, la distance est à une valeur supérieure, alors la lumière en sortie après la seconde lentille sera convergente.

Notons que lorsqu'on utilise tout le champ d'une lentille, il faut se souvenir que l'approximation de lentille mince ne tient pas pour les rayons près du périmètre de la lentille. La distance focale près du périmètre est plus courte que pour la zone centrale, si bien que les rayons extérieurs se focalisent en un point différent que les rayons passant au centre. Cet effet est connu comme l'aberration sphérique qui augmente la taille de la zone focalisée et ainsi diminue la puissance utile pour piéger un micro-objet. Pour contrecarrer partiellement ce défaut, on peut utiliser un faisceau légèrement divergent plutôt qu'un faisceau parfaitement parallèle. Remarquons cependant que cette astuce n'est pas toujours nécessaire puisque les objectifs modernes de microscope sont conçus pour être corrigés des aberrations de sphéricité.

Un point plus intéressant est que l'ajustement des lentilles du télescope permet

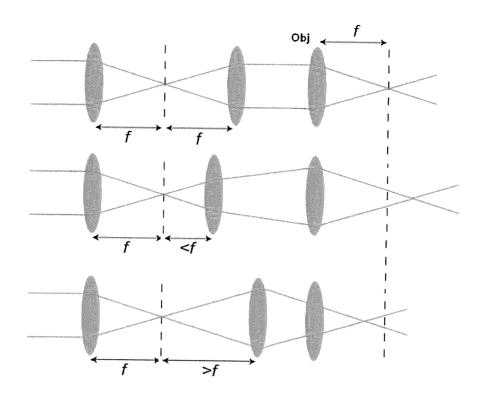


Fig. 4.2: Contrôle de la position axiale du piège optique par rapport au plan de l'image. Schéma adapté de la référence [160].

d'utiliser ce dernier pour changer la position axiale du piège optique en permettant de déplacer le plan de l'image (Figure 4.2).

Un point de grande importance est d'avoir le contrôle sur la position selon les trois dimensions de l'espace de la tache laser dans l'échantillon après l'objectif, indépendamment du contrôle que l'on a sur la position de l'échantillon. Ceci est avantageux puisque cet arrangement optique permet justement de mouvoir le piège sans déplacer l'échantillon et sans perdre la collimation du faisceau laser. Pour ceci, il est bien sûr fondamental que l'optique soit bien alignée mais précisément, nous parlerons par la suite en détail de la façon de réaliser un bon alignement.

En connaissant comment fonctionne un système optique simple tel que constitué d'une lentille, il faut imaginer la meilleure manière pour déplacer la position du faisceau laser à la sortie de l'objectif et contrôler ainsi sa position au sein de l'échantillon. Il est connu qu'une rotation ou la variation angulaire d'un miroir situé au point focal d'une

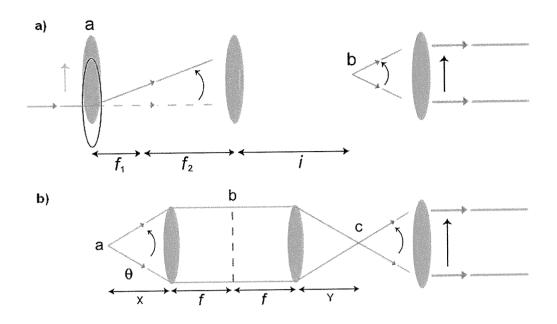


Fig. 4.3: Arrangement des lentilles pour le contrôle adéquat de la position du piège dans le plan de l'échantillon. Schéma adapté de la référence [160].

lentille se traduisent par un déplacement en translation à la sortie de celle-ci. Maintenant, comme la position focale postérieure de l'objectif n'est pas accessible pour être directement utilisée par quelque élément optique susceptible de produire cette rotation, ne serait-ce que par le fait qu'il est protégé par l'emballage de l'objectif lui-même, il est donc nécessaire d'utiliser un plan conjugué équivalent au plan focal arrière de l'objectif. Une des voies pour obtenir ceci est d'utiliser un système de lentilles formant un télescope de Képler placé de telle sorte qu'une des lentilles soit dans un plan conjugué du plan de la pupille d'entrée de l'objectif comme montré sur la figure 4.3 a. La seconde lentille qui apparaît dans la figure est celle chargée de projeter l'image de la lentille placée dans le plan a sur la pupille d'entrée de l'objectif. Pour ceci les lentilles sont placées à la somme de leurs distances focales.

Le plan conjugué au plan a va apparaître à une distance i de la seconde lentille donnée par :

 $i = (f_1 + f_2)(\frac{f_2}{f_1}) \tag{4.1}$ 

De sorte que dans un déplacement de la lentille dans le plan a, il se produira une

rotation dans le plan b. Si on place dans le plan b la pupille d'entrée de l'objectif, cette rotation se traduira par un déplacement à la sortie de l'objectif. Ainsi toute modification de position x-y de la lentille produit une modification de position de la tache dans le plan de l'échantillon.

Une autre manière de contrôler la position du piège est en utilisant la configuration montrée dans la figure 4.3 b. Pour tout télescope de Képler, la rotation à une distance x de la première lentille peut se reproduire dans un plan équivalent à une distance y de la seconde lentille. Cette relation est donnée par :

$$y = f_2 - (\frac{f_2}{f_1})^2 (x - f_1) \tag{4.2}$$

Ceci veut dire que si on place un miroir avec son axe de rotation dans la position a et la pupille d'entrée de l'objectif du microscope dans la position c, il est alors possible de déplacer la position du foyer avec la seule rotation du miroir.

C'est la configuration adoptée dans la majorité des montages de pinces optiques, comme on le montre dans le schéma de la figure 4.1. Le mouvement des miroirs  $M_1$  et  $M_2$  peut être effectué manuellement ou avec l'aide d'un contrôle par un moteur ou par des éléments piézoélectriques. Rappelons ici qu'il existe d'autres systèmes qui utilisent des déflecteurs acousto-optiques ou acousto-électriques pour produire le déplacement du piège. Nous ne les décrivons pas ici et nous renvoyons simplement aux références pertinentes [161, 162].

Bien que nous l'ayons déjà dit, nous insistons sur le point qu'une autre facilité que permet ce système de lentilles est qu'en changeant la distance entre les deux lentilles, à travers la modification de position de la première lentille, il est possible de changer la divergence de la lumière qui entre dans l'objectif et ainsi changer la position du foyer dans la direction de propagation, c'est à dire la direction axiale z (Figure 4.2). Par conséquent, en résumé, il est possible de contrôler la position du foyer dans les trois dimensions x, y et z en changeant la position selon x, y et z de la première lentille seulement, ou bien, on peut déplacer le foyer dans le plan x, y par la rotation d'un seul miroir.

Pour déplacer la position du foyer, une autre possibilité est de déplacer l'objectif selon la direction axiale z. De cette façon, il est aisé de mouvoir la région focale et de la plonger plus ou moins profondément à l'intérieur de l'échantillon. Egalement, on peut

bouger le piège dans l'échantillon en déplaçant la platine micrométrique x-y sur laquelle est fixé la cellule porte-échantillon. Il existe, mais elles sont chères, des platines de microscope avec contrôle de leur déplacement par des éléments piézoélectriques, ce qui permet d'atteindre une précision de seulement quelques nanomètres dans les déplacements.

La lumière laser est déviée jusqu'à l'entrée de l'objectif par une lame dichroïque qui a la double fonction de réfléchir la lumière à la longueur d'onde du laser de capture et de transmettre au travers d'elle la majeure partie de la lumière blanche d'illumination de l'objet pour permettre son imagerie dans le domaine visuel.

L'objectif du microscope est la partie essentielle du microscope, pour ne pas dire que c'est le microscope lui-même. Il est le responsable principal du bon fonctionnement du système et détermine l'efficacité du piégeage optique. Pour choisir un bon objectif, il est nécessaire de tenir compte des caractéristiques essentielles, comme l'ouverture numérique (O.N.), la transmitance ainsi que la distance de travail et le milieu d'immersion de l'objectif. Une grande ouverture numérique (O.N. = 1,2 - 1,4) garantit un plus fort gradient d'intensité, ce qui rend le piège plus efficace. L'ouverture numérique est aussi une bonne mesure de la résolution d'un objectif, les objectifs à haute résolution ayant une grande ouverture numérique. D'autre part une faible ouverture numérique permettra une plus grande profondeur du piège mais au prix d'une diminution de l'efficacité de ce dernier et de provoquer une considérable diminution de la force de capture. Le contraire se produira pour une grande ouverture numérique qui a seulement l'obstacle de la profondeur limitée à laquelle on peut obtenir un piège stable. Par définition, l'ouverture numérique est en rapport avec l'ouverture angulaire de l'objectif et avec l'indice de réfraction du milieu qui suit l'objectif  $(O.N. = n \ sin\theta)$ . Si le milieu situé après l'objectif est l'air (n = 1), l'ouverture numérique ne peut pas être plus grande que l'angle d'ouverture ou d'acceptance de l'objectif, et par conséquent une partie significative de la lumière qui doit entrer à l'objectif peut être perdue par des effets de réfraction comme illustré sur la figure 4.4.

Dans le cas spécifique des pinces optiques, afin de garantir une grande ouverture numérique, il est nécessaire d'adapter l'indice du milieu entre l'objectif et la cellule d'observation en utilisant un liquide adaptateur d'indice. Ainsi, il est recommendé d'employer des objectifs à immersion dans l'eau ou dans l'huile. Nous insistons sur le point que l'ouverture numérique maximale qui caractérise l'objectif doit être considérée avec importance au moment de choisir celui que l'on utilisera puisque de ce choix dépend dans une grande

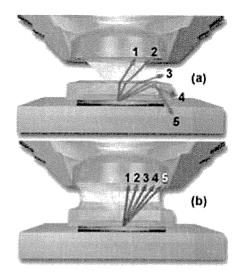


Fig. 4.4: Rôle de l'ouverture numérique de l'objectif du microscope. Dans l'image (a), on n'utilise pas de liquide adaptateur d'indice et la réfraction après la lame couvre-objet empêche les rayons les plus écartés d'entrer dans l'objectif. La situation est résolue en (b) grâce au liquide adaptateur d'indice.

mesure l'efficacité du piège et les éventuelles pertes de puissance. Ajoutons que les objectifs sont étudiés généralement pour leur utilisation avec la lumière visible, ce qui fait que pour d'autres longueurs d'onde comme l'infrarouge utilisé pour le faisceau de capture, leur transmission peut n'être pas la meilleure.

Les objectifs modernes permettent des grandissements de 100 avec une ouverture numérique pouvant dépasser 1,3 par immersion dans un liquide adaptateur d'indice. Ils sont corrigés des aberrations pouvant les affecter, mais leur coût dépend bien sûr des aberrations corrigées et de la qualité de ces corrections. Pour la correction des aberrations chromatiques, on distingue : les objectifs achromatiques corrigés pour le rouge et le bleu et convenant bien pour l'observation visuelle, les objectifs apochromatiques corrigés pour trois longueurs d'onde et remarquablement performants en ce qui concerne la résolution et le contraste et enfin les objectifs semi-apochromatiques à mi chemin entre les deux catégories précédentes. Concernant la correction des aberrations géométriques qui se superposent généralement aux corrections des aberrations chromatiques, on distingue les catégories suivantes : les objectifs plan-achromatiques, plan-semi-apochromatiques et plan-apochromatiques où l'ajout du préfixe plan signifie qu'ils sont corrigés de la courbure de champ.

Après traversée de l'objectif, la lumière laser est focalisée dans le milieu de l'échantillon. Sous l'éclairage d'une lampe d'illumination en lumière blanche, généralement celle faisant partie du système d'illumination traditionnel du microscope, l'image de l'objet capturé est projetée par l'objectif sur la surface sensible du détecteur d'une caméra CCD. La caméra CCD est placée au delà de la lame dichroïque, généralement dans une position prévue par le fabricant du microscope. Le but est évidemment d'obtenir une image agrandie de l'objet piégé dans la région focale. Avantageusement, cette caméra peut être remplacée par une simple WebCam, ce qui constitue une solution peu onéreuse, mais néanmoins très satisfaisante grâce aux progrès technologiques constants de ce secteur.

Pour obtenir une image dans des conditions de sécurité aussi bien pour l'œil de l'observateur que pour les détecteurs, il est nécessaire de placer un filtre sur le trajet de la lumière pour éliminer la réflexion de la lumière laser. Il est possible d'alterner un contrôle visuel avec une observation à l'aide de la caméra CCD en utilisant des filtres appropriés pour sa protection. Plus loin nous verrons aussi comment la caméra CCD peut être utilisée pour effectuer des mesures de position.

Nous allons maintenant commenter une partie qui bien qu'elle n'apparaisse pas dans tous les montages de pinces optiques, apporte au système les qualités nécessaire pour obtenir d'importants résultats quantitatifs. Nous nous référons à ce qui concerne les detecteurs de position. Les détecteurs qui sont utilisés pour déterminer la position de la particule dans le piège sont de la famille des capteurs de position qui, sous certaines conditions peuvent permettre d'obtenir jusqu'à une résolution spatiale nanométrique. Nous utiliserons le sigle anglo-saxon PSD pour "Position Sensor Detector". Ils appartiennent à deux familles distinctes : les détecteurs à 4 quadrants et les détecteurs à effet latéral. Le senseur de position le plus souvent utilisé est celui à 4 quadrants, mais dans notre travail, nous avons commencé avec un PSD à effet latéral, ce qui nous conduit à comparer les deux dispositifs.

La lumière laser qui est diffusée par le micro-objet piégé est collectée par une lentille et dirigée grâce à une lame dichroïque  $M_4$  vers le détecteur de position (Figure 4.1). Différents schémas ont été développés pour effectuer la détection de la position de l'objet capturé et ceux-ci vont déterminer la position du détecteur dans le montage. Une manière directe est de mesurer la position de la particule en projetant l'image de celle-ci sur la surface du détecteur. Une autre voie utilise une configuration qui projette sur le détecteur

une figure d'interférence formée par la lumière qui est diffusée par la particule capturée. Nous parlons plus en détail de ce sujet par la suite.

#### 4.1.2 Montages à pièges multiples

Nous avons décrit un montage de pinces optiques à faisceau unique, donc à piège unique. Ces montages trouvent leur application dans la manipulation de micro-objets, de cellules et pour l'étude des forces d'interaction. Cependant, il peut être utile de pouvoir piéger simultanément plusieurs particules afin de les manipuler séparément. Pour ce faire, on peut : 1 - utiliser un seul laser dont le point de focalisation doit changer de position assez rapidement pour créer plusieurs pièges [163]; 2 - utiliser la diffraction d'un faisceau par un élément optique diffractif de nature holographique afin d'en obtenir plusieurs.

En relation avec la première possibilité, on peut citer comme exemples de dispositifs ceux qui utilisent un assemblage de deux miroirs montés sur des déflecteurs galvanométriques positionnés selon deux axes perpendiculaires et ceux qui adaptent un modulateur acousto-optique pour défléchir le faisceau selon les directions transversales x et y de l'espace. Dans ces dispositifs, toute l'énergie disponible est utilisée pour chaque piège mais pas de façon permanente puisque la particularité de cette solution est de travailler en temps partagé entre chaque position, l'idée étant que le faisceau focalisé doit se déplacer d'un point à un autre en un temps plus court que les temps caractéristiques associés au mouvement brownien d'une particule afin que celle-ci, soumise aux perturbations aléatoires du milieu, ne puisse s'éloigner de sa position.

La deuxième solution a l'élégance de l'holographie. Elle repose habituellement sur l'utilisation d'un modulateur spatial de lumière ("Spatial Light Modulator" ou SLM en anglais). Le SLM est un dispositif qui permet de modifier les caractéristiques spatiales en intensité, amplitude, phase ou polarisation d'un faisceau lumineux (Figure 4.5). Il peut être piloté par un ordinateur, lequel à partir d'un algorithme approprié peut permettre de générer un hologramme dont les propriétés diffractives assureront la génération des faisceaux en nombre et en direction souhaités. Les dispositifs SLM les plus employés dans les montages de pinces optiques sont ceux utilisant des matrices à cristaux liquides dont les pixels sont adressables individuellement.

Les montages à pièges multiples utilisant des dispositifs de balayage du faisceau laser à l'aide de miroirs, de déflecteurs acousto-optiques ou par des techniques d'holographie

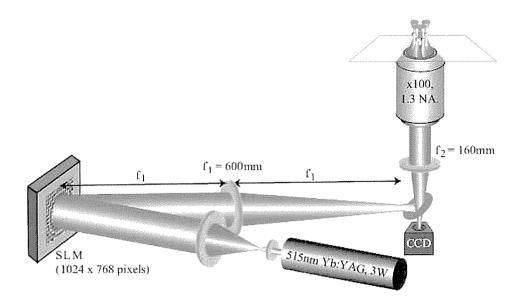


Fig. 4.5: Exemple de montage d'une pince optique holographique permettant la génération dynamique d'hologrammes à l'aide d'un modulateur spatial de lumière.

sont indispensables pour la maîtrise simultanée d'un grand nombre de pièges. Si on ne souhaite que manipuler seulement deux pièges par exemple, d'autres solutions simples sont plus faciles à mettre en œuvre.

La manière la plus astucieuse pour réaliser ces deux pièges est d'utiliser en guise de séparateur des cubes polarisants qui ont la propriété de diviser un faisceau de lumière en deux faisceaux polarisés orthogonalement et se propageant selon deux directions perpendiculaires. En lumière non polarisée, on obtient en sortie deux faisceaux d'égale intensité, l'un polarisé horizontalement, l'autre verticalement. Avec à l'entrée un faisceau lui même linéairement polarisé, on doit orienter sa polarisation selon un angle à 45 degrés pour avoir en sortie deux faisceaux d'égale intensité. Conséquemment, en faisant tourner le plan de polarisation du faisceau à l'entrée à l'aide d'une lame  $\lambda/2$  ou d'un rotateur de polarisation, on peut ajuster la différence relative d'intensité entre les deux voies en sortie. C'est une solution utilisant des cubes polarisants que nous avons choisi pour pouvoir manipuler deux pièges simultanément et dont nous donnerons les précisions techniques un peu plus loin.

Il est en principe possible d'augmenter le nombre de pièges au delà de deux, mais

le montage devient vite inextricable. Un intérêt de cette solution est de permettre la manipulation de faisceaux polarisés et donc de pouvoir étudier les effets éventuels de l'état de polarisation de la lumière sur les forces optiques induites dans le piège.

## 4.2 Mesure de la force optique

A l'égal des innovations technologiques qui ont eu lieu dans les systèmes de pinces optiques, les méthodes employées pour le calibrage et la mesure des forces optiques ont été perfectionnées et diversifiées. Dans la majorité des applications, la mesure de la rigidité du piège optique ("stiffness" en anglais), c'est-à-dire de la constante élastique k est requise pour pouvoir estimer la force du piège.

La combinaison des pinces optiques avec l'utilisation de détecteurs de position est la clé des montages de calibrage. Dans la majorité des cas il s'avère nécessaire de déterminer la position de la particule avec résolution nanométrique ou supérieure. Il est donc essentiel d'avoir la configuration adéquate pour obtenir la résolution maximale et de veiller à préserver un rapport signal/bruit favorable.

Signalons en outre que cet usage de détecteurs de position peut aussi permettre de développer des dispositifs de contre-réaction pour créer des pièges "auto-bloqués" sur la particule sélectionnée afin de la maintenir dans une position prévue à l'avance.

#### 4.2.1 Méthodes pour détecter la position d'une particule

Les méthodes pour déterminer la position et mesurer les fluctuations de la particule dans le piège peuvent être regroupées en deux grandes familles principales selon qu'elles nécessitent ou non l'utilisation de l'image de la particule piégée. Le choix entre une méthode avec imagerie ou sans imagerie détermine la position du détecteur dans l'ensemble du système optique.

#### 4.2.1.1 Méthodes par imagerie directe

Ces méthodes utilisent directement l'image de la particule piégée dans la pince optique et se différencient principalement par le type de détecteur utilisé. La manière la plus directe consiste à projeter l'image de la particule directement sur la surface sensible d'un capteur à balayage de trame comme une caméra vidéo ou les capteurs multi-segmentés constitués de photodiodes discrètes sensibles à la position. La position d'un objet peut alors être déterminée avec une bonne résolution en utilisant un traitement numérique du signal d'acquisition. Connaissant la dimension d'un pixel de la surface sensible, on peut évaluer la position de l'objet en utilisant des algorithmes de centrage. En pratique, cette méthode a besoin d'une vitesse d'aquisition de l'image vidéo qui permette d'atteindre la résolution souhaitée pour un défilement du film compris typiquement entre 25 et 120 images par seconde, ce qui nécessite des caméras à haute vitesse d'acquisition, typiquement  $40\ kHz$ . Toutefois, cette méthode se heurte à l'obstacle de la sensibilité. En effet, le nombre de photons détectés diminue avec l'augmentation de la vitesse d'acquisition des lignes de trame d'image. C'est l'éternel dilemne des détecteurs : plus ils sont rapides, moins ils sont sensibles ; plus ils sont sensibles, moins ils sont rapides. La raison de ce dilemne tient à la taille de la surface sensible.

Les autres alternatives qui ont été développées utilisent les détecteurs de position à grande bande passante sur la surface desquels on projette l'image de la particule piégée. Le détecteur de position peut être placé de la même manière que la caméra vidéo dans le cas précédent, c'est-à-dire dans le port vidéo du microscope. Le détecteur de position le plus souvent utilisé est le détecteur à quatre quadrants qui collecte l'intensité de lumière relative qui arrive sur les quatre quarts de cercle du détecteur. Deux des quatre quadrants sont associés aux mesures selon la direction x et les deux autres, selon la direction y. A partir des deux paires de quadrants, on obtient un signal différentiel qu'on normalise généralement par la somme des signaux collectés sur les quatre quadrants, ce qui élimine aussi l'influence des fluctuations de l'intensité totale de la lumière (Annexe C).

A cause de la petite dimension de la surface sensible d'un détecteur à quatre quadrants, cette méthode nécessite un alignement rigoureux du détecteur sur l'image projetée de l'objet. Pour ce faire, les détecteurs sont généralement montés sur un système de positionnement x-y qui permettent le réglage précis. Pour former l'image, on utilise une source de lumière conventionnelle. Elle doit être suffisamment intense pour bien illuminer le détecteur afin qu'il soit utilisé à un point de fonctionnement qui ne limite pas sa bande passante. L'utilisation d'une source laser pour l'imagerie n'est pas recommandée et elle est de plus souvent impraticable à cause des problèmes de granularité laser ou d'interférences propres à la lumière cohérente, bien que des techniques de phase aléatoire puissent néanmoins réduire cet inconvénient. On peut ajouter que ces techniques utilisant l'imagerie souffrent d'une difficulté majeure qui résulte du faible contraste des micro-

objets souvent employés dans les manipulations avec des pinces optiques, à savoir des sphères transparentes dans l'eau.

#### 4.2.1.2 Méthodes sans imagerie

Ces méthodes utilisent une fraction de la lumière laser qui est diffusée par l'objet capturé, et pour ceci on interpose généralement un deuxième miroir dichroïque entre l'objectif et le condenseur du microscope. Dans ces conditions, avec une puissance de seulement  $1 \ mW$ , il est possible de réaliser une détection plus rapide qu'en utilisant une source de lumière conventionnelle et le détecteur n'est pas limité par le bruit de grenaille jusqu'à des fréquences élevées (quelques dizaines de kHz).

Une des méthodes utilisées pour déterminer avec une grande précision la position d'une particule a été développée dès 1991 par Denk et Webb [164, 165]. Cette méthode utilise une technique interférométrique inspirée du microscope à contraste interférentiel différentiel ou DIC inventé par Nomarski [166, 167]. Le montage utilise deux prismes de Wollaston placés derrière l'objectif du microscope et du condenseur (figure 4.6).

Le système de détection est constitué par une optique de microscope DIC, par des lames demi-onde  $\lambda/2$  et quart d'onde  $\lambda/4$ , un polariseur et deux détecteurs. La lumière polarisée, dont on peut faire tourner le plan de polarisation avec l'aide d'une lame à  $\lambda/2$  si nécessaire, arrive sur le premier prisme de Wollaston et est divisée en deux faisceaux qui vont produire deux taches, normalement limitées par la diffraction, avec des directions de polarisation orthogonales et qui se recouvrent dans le plan où se trouve l'échantillon. Après passage par le plan de l'échantillon, les faisceaux sont recombinés par le second prisme de Wollaston. Le faisceau traverse ensuite une lame à  $\lambda/4$  et passe au travers un second polariseur, l'intensité résultante est mesurée par des photodiodes et du signal différentiel normalisé, on détermine l'état de polarisation.

Quand il n'y a aucune particule piégée ou si l'objet capturé est précisément au centre du piège, après recombinaison par le second prisme, le faisceau résultant a la même polarisation linéaire que le faisceau qui arrive à l'objectif. Ceci est dû au fait que la particule étant parfaitement centrée dans le piège, elle introduit le même déphasage pour les deux composantes du faisceau et par conséquent la lumière recombinée sera aussi polarisée linéairement. Par contre, quand la particule est déplacée de sa position d'équilibre, il apparaît un déphasage entre les deux composantes qui induit une lumière

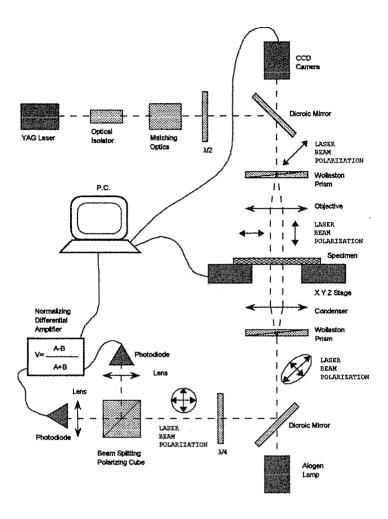


Fig. 4.6: Schéma d'un montage utilisant le contraste interférentiel différentiel DIC [168].

résultante avec une polarisation elliptique. Le degré d'ellipticité donne une mesure du déplacement subit par la particule. L'ellipticité du faisceau recombiné peut être calibrée en fonction d'un déplacement connu de la position de la particule dans le piège.

Finalement on utilise un cube polarisant pour séparer les deux composantes et leur différence est mesurée à partir du signal différentiel normalisé délivré par la photodiode comme montré sur la figure 4.6. Le signal résultant est proportionnel à (A-B)/(A+B), où A et B sont les courants des photodiodes qui sont proportionnels aux intensités des faisceaux.

Avec cette technique, il est possible de détecter des forces inférieures au picoNewton, et comme le laser de capture est le même que celui de détection, le montage est in-

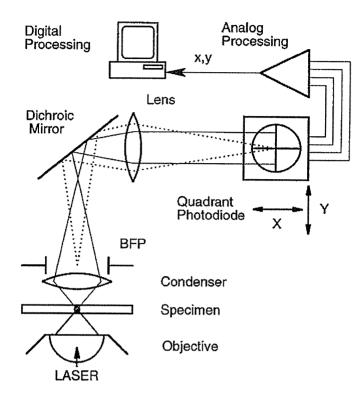


Fig. 4.7: Schéma décrivant un montage avec le détecteur placé dans le plan focal postérieur de l'objectif [169].

trinsèquement aligné, ce qui permet de déplacer le piège sans perdre l'alignement avec le détecteur. Cependant, une limitation à cette technique est qu'on ne peut obtenir que la détection de position selon une seule direction latérale et, certes, la sensibilité de ce montage reste limitée par le bruit brownien.

Un second schéma de détection est celui qui place le détecteur dans le plan focal arrière du condenseur ou sur un plan conjugué à celui-ci. Cette méthode se base sur l'interférence entre la lumière qui est dispersée par l'objet recueilli et la lumière qui n'est pas dispersée [169]. Le signal d'interférence est contrôlé avec le détecteur à 4 quadrants placé dans un plan conjugué au plan focal postérieur comme montré sur la figure 4.7. Notez que ce schéma diffère de celui de la méthode par imagerie directe qui utilise un plan conjugué au plan de l'échantillon.

Le patron d'interférence dans la position du plan focal postérieur représente la distribution d'intensité angulaire de la lumière qui passe au travers de la particule piégée. Ce patron d'interférence qui atteint le détecteur est transformé en un signal différentiel normalisé selon les deux dimensions x et y grâce à la photodiode à 4 quadrants (Annexe C). Dans ce schéma, ce qui est le signal de position n'est pas sensible à la position absolue de la particule dans le plan de l'échantillon, mais il est sensible à la position de la particule relativement à l'axe du faisceau. Le patron d'interférence ne dépend pas de la position du foyer et par conséquent il n'est pas nécessaire de repositionner le détecteur puisque le faisceau de détection et le piège sont intrinsèquement alignés.

# 4.2.2 Méthodes de calibrage de la force d'un piège

Les forces optiques générées dans les pinces optiques sont généralement déterminées de manière indirecte. Le calibrage des forces consiste dans la mesure de la rigidité k du piège et dans celle du déplacement relatif de l'objet capturé. Différentes méthodes ont été mises au point pour permettre d'effectuer le calibrage de la force optique et nous allons maintenant les passer en revue.

#### Méthode d'équipartition

Cette méthode repose sur l'utilisation du théorème d'équipartition de l'énergie appliqué à une particule en équilibre avec un bain thermique. La détermination de la fluctuation thermique de l'objet capturé autour de sa position d'équilibre permet d'obtenir la valeur de la rigidité k du piège. Pour une particule dans un potentiel harmonique le long de la dimension x, le théorème d'équipartition nous dit que :

$$\langle U(x)\rangle = \frac{1}{2}k_x\langle (x-x_0)^2\rangle = \frac{1}{2}k_B\Theta \tag{4.3}$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $\Theta$  la température absolue en Kelvin, x le déplacement de la particule hors de sa position d'équilibre  $x_0$  et  $k_x$ , la constante de raideur ou constante élastique du piège le long de x. Le symbole  $\langle \ \rangle$  indique une quantité movennée dans le temps :

$$\langle (x - x_0)^2 \rangle = \lim_{T \to \infty} \frac{1}{T} \sum_{i=1}^n (x_i - \overline{x})^2 \cdot \Delta t$$
 (4.4)

où T est le temps total d'observation,  $\Delta t$  l'intervalle de temps entre les observations et  $\overline{x}$  la moyenne des mesures pendant le temps d'observation. Ainsi, si nous pouvons mesurer avec précision l'écart quadratique moyen ou variance de la coordonnée x de la particule dans le piège et si nous connaissons la température, nous pouvons en déduire

une valeur de la constante élastique  $k_x$ .

La mesure des fluctuations de position de la particule nécessite l'utilisation d'un détecteur de position et techniquement, cette méthode est proche de celle du spectre de puissance que nous présentons tout de suite après. La différence est qu'elle n'exige pas de calculer le spectre de puissance du signal et surtout, elle présente l'avantage qu'il n'est pas non plus nécessaire de connaître le coefficient de viscosité du fluide, ni la forme ou les dimensions de la particule. Comme il s'agit d'une mesure moyenne, il n'est pas non plus indispensable d'utiliser une fréquence d'échantillonnage élevée. En contre-partie, cette méthode n'est pas très précise.

#### Méthode du spectre de puissance

Dans les grandes lignes, il s'agit de décrire le comportement d'une particule placée dans un potentiel harmonique et soumise à un mouvement brownien aléatoire induit par les fluctuations thermiques dans un fluide incompressible. Le mouvement brownien a été beaucoup étudié à la même époque par Einstein et par Langevin. Le mouvement d'une particule dans un tel potentiel est le mieux décrit par la théorie dite de Einstein-Ornstein-Uhlenbeck du mouvement brownien [170]. Il est cependant plus commode pour notre approche d'utiliser plus simplement l'équation de Langevin qui décrit ce mouvement le long d'un axe :

$$m\frac{d^2x(t)}{dt^2} = -kx(t) - \gamma\frac{dx(t)}{dt} + F(t)$$

$$(4.5)$$

où x(t) représente la trajectoire de la particule brownienne, m est la masse de la particule, k la constante élastique qui décrit la force harmonique et  $\gamma$  le facteur hydrodynamique en rapport avec la viscosité du milieu et la dimension de la particule. De la loi de Stokes pour des particules sphériques en mouvement dans un fluide ou dans un fluide en mouvement,  $\gamma = 6\pi R \eta$  où la viscosité du fluide  $\eta = \rho \nu$  est reliée à la densité du fluide et la viscosité cinématique  $\nu$ , R étant le rayon de la particule. Parfois on doit considérer un facteur de correction qui dépend de la distance à la surface de la cellule porte-échantillon de la particule capturée. La force brownienne aléatoire F(t) est générée par les fluctuations thermiques à la température absolue T. Cette force est donnée par  $F(t)=(2k_BT\gamma)^{1/2}\xi(t)$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $\xi(t)$  est la fluctuation selon x de la position de la particule correspondant à un bruit blanc gaussien (" $\delta$ -correlated Gaussian noise" en anglais) [171].

Pour des particules avec un faible nombre de Reynolds <sup>4</sup>, le terme d'inertie est négligeable. Dans ce cas, en faisant la transformée de Fourier de l'équation résultante, nous obtenons le spectre de puissance qui est donné par :

$$S_x(f) = \frac{k_B T}{\gamma \pi^2 (f_c^2 + f^2)} \tag{4.6}$$

où

$$f_c = \frac{k}{2\pi\gamma} \tag{4.7}$$

 $k_B$  est la constante de Boltzmann et T la température absolue de l'échantillon. La fréquence de coupure  $f_c$  décrit la relation entre la constante élastique du piège et le coefficient de friction pour un mouvement rectiligne avec vitesse constante de la sphère dans le fluide. On note que, à la constance du facteur  $\gamma$  caractérisant les propriétés hydrodynamiques du fluide, la constante élastique est proportionnelle à la fréquence de coupure  $f_c$ .

Pour la situation limite où  $f \ll f_c \Rightarrow$ 

$$S_x(f) \cong S_0 = \frac{k_B T}{\gamma \pi^2 f_c^2} = \frac{2k_B T}{\pi k f_c}$$
 (4.8)

on obtient une droite horizontale.

Pour l'autre situation limite telle que  $f >> f_c \Rightarrow$ 

$$S_x(f) \cong \frac{k_B T}{\gamma \pi^2 f^2} \propto \frac{1}{f^2} \tag{4.9}$$

on obtient une courbe décroissante, de sorte que l'intersection de ces deux courbes donne la fréquence de coupure, d'où on extrait la valeur de la constante élastique qui caractérise la force exercée sur la particule dans le piège (Figure 4.8).

Comme le signal délivré par le détecteur est une tension analogique, nous avons besoin de faire une première transformation de x à V. En supposant une réponse linéaire du détecteur  $x = \beta V$ , où  $\beta$  est un facteur de calibrage, alors le spectre de puissance du

 $<sup>^4</sup>$ Le nombre de Reynolds Re est un nombre sans dimension utilisé en dynamique des fluides. Il permet de caractériser un écoulement, en particulier la nature de son régime, laminaire (Re faible), transitoire ou turbulent (Re élevé). Calculé par  $Re = VD/\nu$ , il représente le rapport entre les forces d'inertie dépendant de la vitesse V du fluide relativement à l'objet de dimension caractéristique D et les forces de viscosité mesurées par le coefficient de viscosité cinématique  $\nu$ .

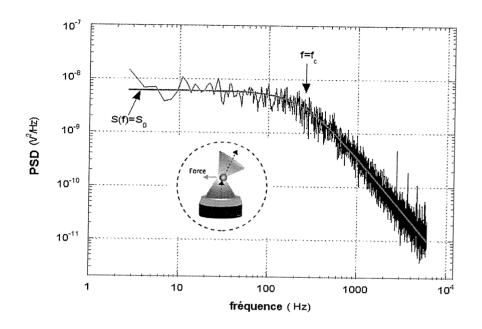


Fig. 4.8: Fréquence de coupure  $f_c$  apparaissant dans le spectre du signal associé au mouvement de la particule dans le piège.

signal V(t) du détecteur s'écrit :

$$S_V(f) = \frac{1}{\beta^2} [S_x(f)] = \frac{1}{\beta^2} \frac{k_B T}{\gamma \pi^2 (f_c^2 + f^2)}$$
(4.10)

De l'expression de  $\gamma$  et de l'équation 4.8, nous pouvons écrire que :

$$f_c = \frac{k}{12\pi^2 R\eta}$$
 et  $S_V(0) = V_0 = \frac{S_0}{\beta^2} = \frac{24\pi R\eta k_B T}{k^2 \beta^2}$  (4.11)

Ainsi il est possible d'obtenir les valeurs de k (Equation 4.7) et de  $\beta$  à partir des résultats expérimentaux :

$$k = (12\pi^2 R\eta) f_c \quad et \quad \beta = \frac{1}{\pi f_c} \sqrt{\frac{k_B T}{\gamma V_0}}$$
(4.12)

Ces expressions sont valables en général pour le cas où on considère les effets hydro-

dynamiques, il change seulement l'expression pour la valeur de  $S_x$  qui tend heureusement à être égale aux basses fréquences. Un autre facteur qui peut introduire des modifications est  $\gamma$  si on travaille avec une haute précision.

# Méthode de la force d'échappement

Cette méthode détermine la force minimale requise pour expulser la particule du piège. Pour produire la force nécessaire, la particule doit être poussée par le fluide, en déplaçant le piège relatif à la table fixe du microscope ou en déplaçant la table si on utilise un piège fixe. La vitesse de la particule, après avoir immédiatement abandonné le piège, est déterminée à partir d'une séquence vidéo réalisée simultanément avec une caméra. Dans ce cas on a besoin de connaître le coefficient de viscosité. Il est aussi possible d'effectuer la mesure en maintenant une vitesse fixe de la platine du microscope et en diminuant la puissance du laser de capture jusqu'à ce que la particule s'échappe. Cette méthode ne requiert pas un détecteur de position avec une précision nanométrique.

# Méthode de la force d'entrainement ("drag force" en anglais)

Elle est fondée sur la mesure du déplacement de la particule de sa position d'équilibre en raison de l'application d'une force d'entrainement connue produite par le milieu. Ainsi il est possible de déterminer la rigidité du piège à partir de la loi de Stokes :

$$k = F/x \tag{4.13}$$

La force d'entrainement est produite par des déplacements contrôlés de la platine du microscope, en maintenant le piège dans une position fixe. Cette méthode a besoin d'une platine avec un contrôle piézoélectrique parfaitement calibré. Comme la force dépend de l'hydrodynamique de l'objet capturé, il est nécessaire de connaître le coefficient d'entrainement de la particule, ce qui implique de connaître la forme et les dimensions de la particule et la viscosité du fluide. On doit aussi considérer les effets relatifs à l'environnement de la particule, notamment à la proximité aux parois du récipient. Ceci fait que la méthode est recommendable seulement quand la particule est sphérique puisque dans ce cas on connaît l'expression correcte de la force d'entrainement.

Les mesures de la force d'entrainement sont lentes en comparaison avec le mouvement thermique de la particule, par conséquent il n'est pas nécessaire que le système de détection possède une grande largeur de bande passante.

# Méthode de la réponse impulsionnelle

Cette méthode détermine la rigidité du piège à partir de la rapidité avec laquelle la particule répond à un mouvement rapide du piège. Pour un déplacement petit du piège  $x_t$ , la réponse de la particule est  $x_p$ , et la relation entre les deux est :

$$x_p = x_t (1 - \exp(\frac{-kt}{\beta})) \tag{4.14}$$

où  $\beta$  est le coefficient de viscosité et k la rigidité du piège. Pour déterminer k on doit donc connaître  $\beta$ .

La constante de temps associée au mouvement du piège doit être beaucoup plus rapide que le temps de saut caractéristique de la particule  $\beta/k$ . Dans cette méthode, on ne requiert pas le calibrage précis du détecteur dont on exige seulement qu'il doit posséder une grande bande passante.

# Méthode du transfert de la quantité de mouvement

Cette méthode est valable quand il est possible de collecter toute la lumière qui est diffusée par la particule dans le piège. La force transversale peut alors être déterminée directement à partir du transfert du moment cinétique au moyen de la mesure de l'angle du faisceau défléchi par la particule [172–174].

Comme la force est donnée par la vitesse de changement du moment et par la conservation du moment linéaire, l'expression de la force est exprimée par :

$$F = \frac{dp}{dt} = n.\sin\theta \frac{I.X}{c.R} \tag{4.15}$$

où I est l'intensité de la lumière, c la vitesse de la lumière dans le vide,  $n.sin\theta$  l'ouverture numérique O.N. de la lentille qui collecte la lumière du piège, R est le rayon de l'ouverture postérieure de l'objectif et X est le déplacement de la sphère par rapport à l'axe optique.

En utilisant cette méthode, il n'est pas nécessaire de connaître ni la viscosité, la forme, les dimensions ou l'indice de réfraction de la particule piégée. D'autre part la majorité des montages de pinces optiques utilisant un objectif avec une grande ouverture numérique, il se peut qu'une quantité significative de la radiation soit diffusée par l'objet et ne puisse être correctement récupérée. Cette situation n'est pas bonne pour utiliser cette méthode. Dans d'autres montages où l'on crée plus d'un piège, un objectif avec

une faible ouverture numérique est préféré et la pupille d'entrée de l'objectif n'est pas nécessairement complètement couverte par le faisceau comme dans les cas précédents. Dans ces montages, pratiquement toute la lumière diffusée peut être récupérée et par conséquent, l'angle de déflection de la radiation dispersée peut être déterminé.

# 4.2.3 Sélection de la méthode de calibrage

Après avoir exposé un panorama assez exhaustif des différentes méthodes de calibrage qui sont utilisées dans les systèmes de pinces optiques, et considérant les techniques existantes pour détecter la position de la particule dans le piège, nous pouvons évaluer les caractéristiques de chacune et choisir celle qui sera la plus facile à mettre en œuvre et à adapter à notre montage pour répondre aux intérêts de notre étude et aux conditions spécifiques de notre travail. Nous procédons donc à une analyse critique des différentes méthodes de calibrage de la force optique.

Comme nous l'avons vu, les méthodes par imagerie nécessitent un caméra vidéo à haute résolution et rapide. En plus d'exiger de maintenir un alignement du piège par rapport à la surface du détecteur, ces méthodes sont particulièrement sensibles aux vibrations mécaniques, qui ne peuvent être réduites qu'en installant le montage sur une table optique correctement isolée.

D'autre part, les méthodes qui utilisent la lumière diffusée sont généralement sensibles aux instabilités de pointé du faisceau laser et aux vibrations du détecteur. La méthode à contraste interférentiel différentiel est relativement insensible aux vibrations par le fait qu'elle mesure un état de polarisation. Cependant elle reste vulnérable aux fluctuations de pointé du laser de piégeage car celles-ci induisent des fluctuations de la position du piège relativement à la particule. D'autres inconvénients apparaissent avec cette méthode comme le fait qu'elle permette seulement une évaluation selon une seule dimension du changement de position. En outre, elle nécessite de nombreux composants optiques et l'usage de deux détecteurs.

D'un autre côté, la configuration qui utilise le plan focal postérieur du condenseur pour y placer le détecteur permet de déterminer les forces de piégeage selon les deux dimensions latérales, ce qui confère une grand avantage à cette approche. Sous certaines conditions, elle permet aussi d'effectuer la mesure de la force selon la direction axiale, et donc, de cette façon, de décrire les forces selon les trois dimensions.

Nous considérons que c'est la configuration la plus favorable pour être utilisée dans notre montage. Il reste à choisir la méthode de calibrage qui correspondra de manière appropriée à cette configuration.

Parmis les méthodes de calibrage présentées, certaines ne nécessitent pas la connaissance des caractéristiques du fluide comme par exemple sa viscosité. Cet aspect peut se révéler avantageux. Si nous nous guidons sur cet aspect, les méthodes qui apparaissent les plus favorables sont la méthode d'équipartition et la méthode par transfert de moment. D'un autre côté, les méthodes qui nécessitent une mise en mouvement du fluide à une vitesse parfaitement contrôlée ou bien un mouvement précis du piège par rapport à la platine du microscope ou inversement de la platine par rapport au piège, comme c'est le cas avec les méthodes de la force d'échappement, de la force d'entrainement ou de la réponse impulsionnelle, sont plus compliquées et coûteuses. Elles nécessitent en effet une platine à contrôle micrométrique piézoélectrique, ou un dispositif de circulation de fluide ou une caméra vidéo rapide. D'autre part, la méthode de transfert de moment est intrinsèquement limitée par le fait qu'elle nécessite de collecter toute la lumière diffusée par la particule. Le tableau 4.2 adapté de la référence [168] compare les différentes méthodes de calibrage réalisées sur des billes de latex de  $1~\mu m$  de diamètre.

Bien sûr, toutes ces différentes méthodes présentées ont leurs avantages propres et leurs inconvénients mais toutes doivent garantir un résultat équivalent. Cependant, pour notre travail, il nous a fallu en choisir une et à la suite de notre analyse comparative, il nous a semblé que la méthode la plus facile à mettre en œuvre en utilisant un microscope optique inversé conventionnel sans obliger à des modifications importantes de ce dernier était la méthode du spectre de puissance. Cette méthode est aussi souvent employée par d'autres auteurs et elle a fait l'objet d'analyses spécifiques. C'est ainsi que des outils spécifiques à cette méthode sont disponibles auprès de banques de programme via Internet, comme nous l'indiquons au paragraphe suivant.

# 4.2.4 Programme pour déterminer la constante de force

Pour extraire des mesures de fluctuation de position de la particule la valeur de la constante de force par la méthode du spectre de puissance décrite précédemment, nous avons utilisé le programme TweezerCalib 2.1 [175] constitué de routines écrites pour Mat-Lab version 6.5. Ces routines ont été écrites par les groupes de recherche de laboratoires

Tab. 4.2: Tableau comparatif des différentes méthodes de calibrages appliquées à des billes de latex de 1  $\mu m$  de diamètre.

	Equipartition	Spectre de puissance	Force d'entrainement	Transfert d'impulsion	
Domaine validité	$\pm 250 \ nm \text{ selon}$ $x \text{ et } y$	$\pm 250 \ nm \text{ selon}$ $x \text{ et } y$	$\pm 250 \ nm \ \text{selon}$ $x \ \text{et} \ y$ $\pm 100 \ nm \ \text{selon}$ $z$	$\pm 250 \ nm \ \text{selon}$ $x \ \text{et} \ y$	
Paramètres calibrage	$k_x \sim k_y \ eta_x$	$\substack{k_x \sim k_y \\ \beta_x}$	$k_x, k_y, k_z \ eta_x, eta_y, eta_z$	$k_x$ et $k_y$	
Erreurs typiques	$\frac{\delta k/k}{\sim}5\%$ $\delta \beta/\beta \sim 3\%$	$\frac{\delta k/k}{\sim}5\%$ $\delta \beta/\beta \sim 3\%$	$\frac{\delta k/k}{\sim}2\%$ $\delta \beta/\beta \sim 2\%$	$\delta k/k{\sim}6\%$	
Points Positifs	Rapide (1 min.) Propreté de la solution non nécessaire Pas de calcul du spectre	Rapide (1 <i>min</i> .) Propreté de la solution non nécessaire	Mesure de $k$ le long des trois directions $x, y, z$	Applicable à toute configuration Paramètres du fluide non nécessaires	
Points négatifs	Ne permet pas déterminer $k_z$ de $k$ et de $\beta$ Mesure d'un seul paramètre à la fois	Ne permet pas déterminer $k_z$	Long temps de calibrage Nécessité de lier des billes à la surface Propreté de la solution exigée	Nécessite de collecter toute la lumière diffusée Mise en œuvre délicate	

au Danemark et en Allemagne qui comptent avec une grande expérience antérieure dans ce type de travail [176, 177]. Ces routines sont mises à la libre disposition de chacun via Internet et l'éditeur de *Computational Physics Communication* [178]. Les explications relatives à l'utilisation et au fonctionnement du programme sont détaillées dans la référence [179].

Quelques exigences concernant les données expérimentales sont importantes à prendre en compte. Pour augmenter la précision des résultats, les séquences de données doivent

être enregistrées sur un temps suffisamment long et à une fréquence d'échantillonnage élevée. D'après le théorème de Shannon, la fréquence d'échantillonnage doit être égale à au moins deux fois la plus haute fréquence contenue dans le signal à enregistrer.

Pour remplir cette condition, il faut disposer d'un système d'acquisition numérique qui ait une profondeur de mémoire suffisante. Nous avons eu à notre disposition un oscilloscope Tektronix, modèle DPO Digital Phosphor Oscilloscope dont les caractéristiques principales sont les suivantes : une bande passante analogique de 500 MHz, une vitesse d'échantillonnage pouvant atteindre 2,5 Giga-échantillons par seconde et une profondeur de mémoire permettant l'enregistrement jusqu'à un million de points, correspondant à des séquences temporelles jusqu'à 100 secondes pour un échantillonnage à 10 kHz. Le programme utilise un algorithme de transformée de Fourier rapide qui travaille mieux si le nombre de points à traiter est une puissance de 2. En pratique, il est raisonnable de travailler avec  $N=2^n$  points, n étant compris entre 12 (N=4096 points) et 15 (N=32768 points).

Le programme s'ouvre sur une fenêtre interactive où apparaissent les paramètres nécessaires pour le calcul du spectre de puissance, comme illustré sur la figure 4.9 a. Dans cette fenêtre, on introduit la fréquence d'échantillonnage utilisée, le nombre de points que contient le bloc de réduction des données, le domaine de fréquences que l'on va considérer pour l'ajustement et quelques données caractéristiques sur l'objet à piéger comme sa densité et ses dimensions. Une option supplémentaire permet de prendre en compte pendant l'ajustement les effets hydrodynamiques comme la distance à une paroi, la densité du fluide et son coefficient de viscosité cinématique. Il est aussi possible d'introduire des filtres électroniques pour une réduction virtuelle du bruit, ou de prendre en considération des filtres pour éliminer les effets de crénelage ou de repli de spectre ("aliasing" en anglais) dû à une fréquence d'échantillonnage trop élevée (sur-échantillonnage).

Le programme élimine d'abord les effets de diaphonie ("cross-talk" en anglais) entre les canaux de sortie du détecteur de position et s'assure que la distribution des positions enregistrées corresponde à une distribution boltzmanienne de la particule dans le piège harmonique comme sur la figure 4.9 b. La compression et la réduction du bruit s'obtiennent au moyen de la méthode de "blocking" [180] et l'ajustement se fait grâce à des routines standards de moindres carrés. Le bilan statistique de l'ajustement est retourné par le programme.

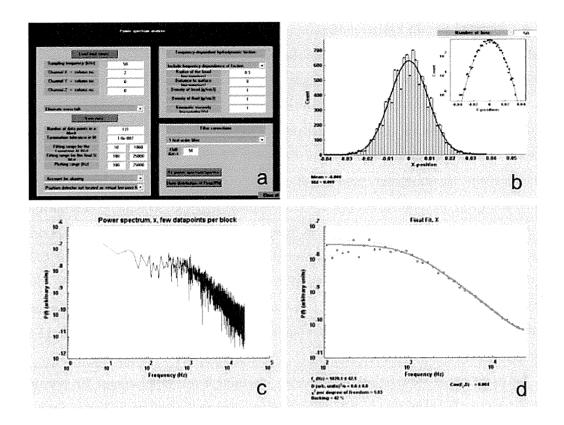


Fig. 4.9: Ecran intéractif et graphiques de résultats du programme TweezerCalib 2.1.

Les figures 4.9 c et 4.9 d montrent la transformée de Fourier rapide d'un signal typique et comment est la courbe ajustée après avoir réalisé la réduction des données.

# 4.3 Notre montage expérimental

Nous allons maintenant décrire et donner les détails relatifs aux montages spécifiques que nous avons construits et utilisés dans notre travail.

# 4.3.1 Montage avec un piège optique

La première installation construite est composée de tous les éléments fondamentaux pour effectuer un calibrage adéquat des forces de capture. Le schéma de la figure 4.10 montre les éléments de cet assemblage. L'installation est basée sur l'utilisation d'un microscope inversé NIKON, modèle Ellipse 100 équipé d'un objectif ACHROPLAN, aussi de NIKON, dont les caractéristiques sont les suivantes : x100, ouverture numérique O.N.

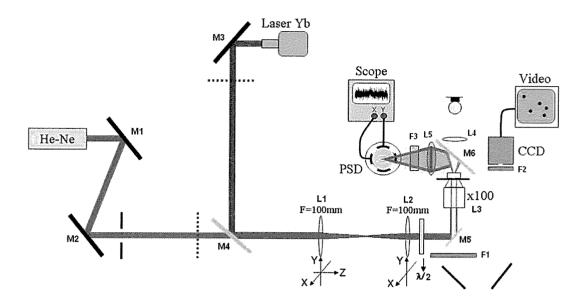


Fig. 4.10: Installation pour le piégeage et la détection de position de particules. Le montage utilise un laser à fibre dopée Ytterbium à 1,064  $\mu$ m.

= 1,25, distance de travail W.D.  $= 0,23 \ mm$ , corrigé à l'infini pour des lames couvre-objet standard de  $0,17 \ mm$  d'épaisseur. L'objectif est à immersion dans l'huile et corrigé des aberrations chromatiques pour 2 longueurs d'onde et des aberrations sphériques.

La source laser pour le piégeage est un laser à fibre dopée Ytterbium de la société  $IPG\ Photonics$  (Figure 4.11). Ce laser génère un faisceau monochromatique monomode à 1,064  $\mu m$  dans un mode gaussien  $TEM_{00}$ , polarisé linéairement. Le faisceau en sortie de fibre est parfaitement collimaté en un faisceau parallèle de diamètre 6 mm et la puissance délivrée en continu peut s'élever jusqu'à 1 W.

Pour introduire le faisceau laser dans le microscope, nous avons dû aménager quelques modifications et adaptations du microscope. Elles ont été faciles à faire car l'agencement même du microscope Ellipse 100 permettait de disposer sous l'objectif d'un espace suffisant où placer une lame dichroïque  $M_5$  permettant la réflexion maximale de la radiation infrarouge à 1,064  $\mu m$  du laser et une bonne transmission dans le visible. La figure 4.12 montre une photographie de l'adaptation réalisée.

Pour les conditions de notre montage, il est possible d'estimer la valeur théorique minimale que pourrait avoir la tache laser au "waist" du point de focalisation du faisceau après l'objectif. Un diamètre d'approximativement 360 nm peut être évalué à partir de

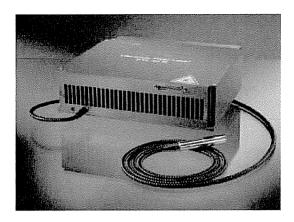


Fig. 4.11: Photographie du laser à fibre dopée Ytterbium de IPG Photonics utilisé dans notre montage.



Fig. 4.12: Montage réalisé pour adapter une lame dichroïque sous l'objectif afin de permettre l'introduction du faisceau laser dans le microscope Ellipse 100.

l'expression:

$$\varpi = \frac{1.22\lambda_0}{n} \sqrt{(\frac{n}{O.N.})^2 - 1} \tag{4.16}$$

où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde du laser de capture, n l'indice de réfraction du milieu environnant qui, dans notre cas est l'indice de l'eau 1,33 et O.N. est l'ouverture numérique de l'objectif, 1,25 dans notre cas.

Pour la détection des fluctuations de position de la particule piégée, nous avons utilisé un laser HeNe de 10~mW de puissance. Astucieusement, nous avons conçu notre montage pour que le faisceau "rouge" du laser HeNe puisse être exactement superposé sur le trajet du faisceau laser de piégeage "infrarouge" invisible afin de servir de guide

Largeur Dim. Pic de Niveau de Niveau de Modèle Type de bande  $(mm^2)$ Sensib. Sensib. bruit (MHz)(nm)(A/W)(W/Hz)Hamamatsu effet latéral 1 13x13920 0,6 S1200 2DHamamatsu 4-quadrants 50  $8x10^{-15}$ 1,6x2,0900 0,6 S6242 Si PIN

Tab. 4.3: Tableau comparatif des caractéristiques des deux types de senseurs de position utilisés dans ce travail.

pour réaliser plus facilement toutes les procédures d'alignement que nous décrirons dans le paragraphe 4.3.3.

Pour la détection de la position, nous avons travaillé avec deux types de dispositifs : une photodiode à grande surface et à effet latéral sur 2 dimensions (modèle Hamamatsu S 1200 avec une surface sensible de  $13 \times 13 \ mm^2$ ) et une photodiode PIN en silicium à quatre quadrants (modèle Hamamatsu S 6242 avec une surface sensible de  $1.6 \times 2.0 \ mm^2$ ).

Le détecteur à effet latéral fournit les données de position avec une haute résolution et une haute vitesse de réponse. Le détecteur à 4 quadrants possède également une haute sensibilité mais une meilleure bande passante, jusqu'à  $50\ MHz$  contre  $1\ MHz$ . De plus, il possède un meilleur niveau de bruit et il permet une meilleure résolution spatiale. La comparaison entre les caractéristiques de ces deux détecteurs est détaillée dans le tableau 4.3.

Pour renvoyer la lumière diffusée du laser HeNe vers le détecteur de position, une deuxième lame dichroïque  $M_6$  est placée entre l'échantillon et le condenseur du microscope (Figure 4.13). Beaucoup d'assemblages expérimentaux utilisent le condenseur lui-même du microscope pour conduire le faisceau diffusé du laser HeNe d'alignement et de détection jusqu'au détecteur. Dans notre cas particulier, l'agencement du microscope ne le permettait pas sans faire des modifications considérables, d'où la solution plus simple d'utiliser

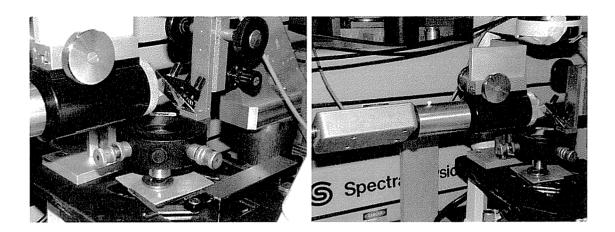


Fig. 4.13: Détails (photographie de gauche) du montage de la lame dichroïque pour renvoyer la lumière diffusée du laser HeNe vers le détecteur de position dans son boîtier (photographie de droite).

la lame  $M_6$  à haute réflectance pour le rouge du laser HeNe et une haute transmitance pour la lumière blanche d'éclairage de l'échantillon. Cette lame est alignée pour que le faisceau sorte dans un plan horizontal. La lentille  $L_5$  est placée sur le trajet du faisceau et à une distance qui peut être variable. Sa fonction unique est de former l'image du piège dans son plan focal où on placera la surface sensible du détecteur de position. Le filtre  $F_3$  est placé avant le détecteur pour empêcher que la lumière infrarouge du laser à fibre dopée Ytterbium ne l'atteigne. Les sorties des signaux x et y du détecteur vont à l'oscilloscope où sont enregistées les données expérimentales.

A cause des défauts de la lame dichroïque utilisée, et peut-être de l'objectif, qui ne transmettent pas de façon égale la lumière des faisceaux du laser HeNe et du laser à fibre dopée Ytterbium, il existe une légère différence de position entre les deux points de focalisation correspondants dans l'échantillon. Ceci peut introduire des erreurs au moment de déterminer la position de la particule, mais ce défaut peut être corrigé en plaçant une lentille entre les miroirs  $M_2$  et  $M_4$  de sorte qu'en déplaçant sa position dans la direction de propagation, on puisse adapter la position de la focalisation du laser HeNe sans désajuster le système des lentilles qui contrôlent la position du piège dans l'échantillon.

Dans la figure 4.13, on peut aussi apercevoir le dispositif porte-échantillon utilisé dans nos expériences. Pour nos observations, une goutte de liquide contenant les particules à étudier en suspension était déposée sur une lamelle couvre-objet sur laquelle était collé un anneau métallique qui contenait le liquide en procurant poids et stabilité. Grâce à ce

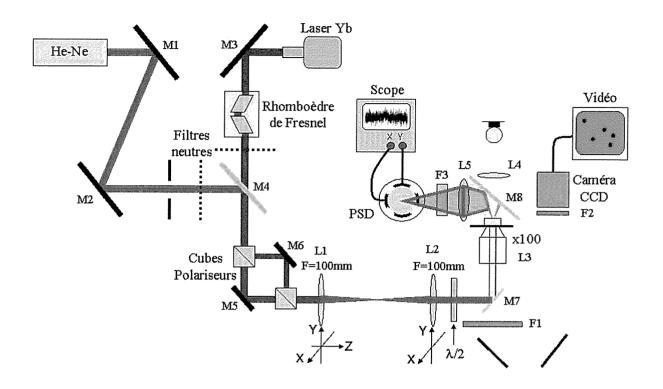


Fig. 4.14: Schéma du montage avec deux pièges optiques.

dispositif, il a été possible de travailler dans le volume du liquide.

#### 4.3.2 Montage avec deux pièges optiques

Nous avons réalisé une seconde installation pour pouvoir disposer simultanément de deux pièges contrôlables indépendamment. Pour réaliser un montage qui permette de manière simple de créer et de manipuler deux pièges à la fois et d'avoir un contrôle aussi de l'état de polarisation du faisceau de capture, nous avons introduit une petite modification du montage précédent. Pour disposer de deux pièges ayant des caractéristiques semblables, nous avons placé sur le trajet du faisceau laser deux cubes polariseurs séparateurs comme illustré sur la figure 4.14.

Les cubes séparateurs, traités et adaptés pour la longueur d'onde de 1,064  $\mu m$  que nous utilisons, divisent le faisceau incident en deux faisceaux polarisés linéairement selon des directions de polarisation orthogonales entre elles. Après traversée du premier cube polarisant, les deux faisceaux, réfléchis respectivement sur les miroirs ( $M_5$  et  $M_6$ ), sont recombinés par un deuxième cube polarisant. Les miroirs doivent être placés de telle sorte

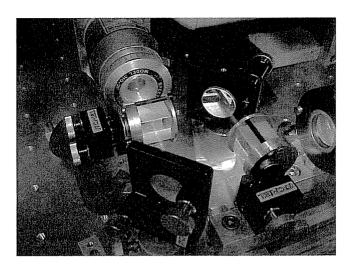


Fig. 4.15: Photographie du dispositif avec les cubes polarisants pour l'obtention de deux pièges optiques simultanés.

que soient respectées les conditions établies précédemment pour le contrôle du piège dans l'échantillon. Par le choix des lentilles dont la focale est de  $100 \ mm$ , ceci conduit à un montage assez compact comme illustré sur la photographie de la figure 4.15.

Cette petite adaptation permet de contrôler chaque piège de manière indépendante (Figure 4.16). Afin de faciliter les réglages, nous avons aussi adapté le montage pour que le faisceau HeNe, réfléchi par une lame dichroïque placée dans la position du miroir  $M_4$ , puisse servir comme unique faisceau de référence. En passant également à travers les cubes polarisants, le faisceau du laser HeNe servira ainsi de référence pour la détermination visuelle de la position de chacun des pièges.

Afin de pouvoir, le cas échéant, modifier l'intensité relative du faisceau laser pour chacun des pièges, nous avons placé un rotateur de polarisation avant le montage des cubes séparateurs. Ce rotateur de polarisation est constitué d'un rhomboèdre de Fresnel qui assure une parfaite rotation de la polarisation linéaire du faisceau de piégeage. Son utilisation permet un équilibrage précis des deux voies et donc de l'intensité de la lumière injectée dans chaque piège.

## 4.3.3 Alignement d'un montage de pinces optiques

Réaliser un alignement correct, dans un montage tel celui que nous avons décrit pendant tout le paragraphe est la clé de ce qui peut garantir le succès dans l'obtention d'un

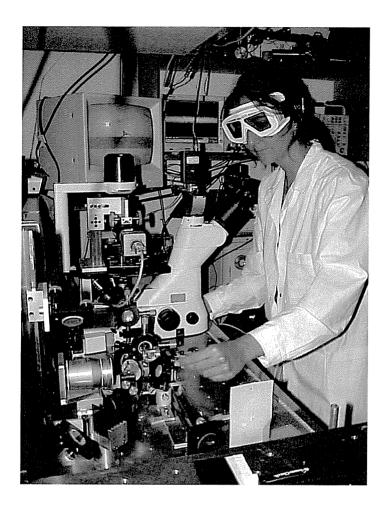


Fig. 4.16: Photographie du montage complet de pinces optiques en cours d'utilisation.

piège optique efficace et bien stable. A ce stade, nous allons préciser les recommandations à suivre les plus courantes pour aligner proprement un montage de pinces optiques.

On choisit initialement la hauteur adéquate du faisceau afin qu'elle coïncide le mieux possible avec le centre de la lame dichroïque notée  $M_5$  sur la figure 4.10 (et  $M_7$  sur la figure 4.14) qui assure l'entrée du faisceau dans le système optique du microscope. On réalise un premier alignement correct du faisceau avec le microscope à l'aide uniquement des seuls miroirs, sans placer aucune des lentilles du télescope de Képler. En observant la position de la tache laser sur un écran placé en sortie de l'objectif du microscope, on perfectionne l'alignement jusqu'à assurer un parfait centrage de tous les éléments optiques. En changeant la position de l'objectif et avec elle celle du foyer, nous devons nous assurer

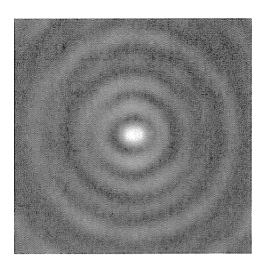


Fig. 4.17: Image de la tache laser telle qu'enregistrée au moment des procédures de réglage du montage.

que nous formons des anneaux de diffraction parfaitement concentriques autour de la tache, ce qui signifie que l'on respecte bien la symétrie du foyer dans la direction axiale. La tache doit apparaître approximativement dans le centre du domaine visuel de l'objectif du microscope. On vérifie aussi que la symétrie axiale de la tache n'est pas altérée lorsqu'on déplace le point de focalisation (Figure 4.17). Tout mauvais réglage à ce stade apparaît avec la présence d'aberrations marquées telles un défaut de coma spectaculaire.

Après que cette première partie ait été assurée, on peut commencer par installer la lentille du système qui est la plus proche de l'objectif et on l'ajuste de telle sorte qu'elle n'affecte pas les réglages réalisés auparavant. Pour ce faire, il est nécessaire que les lentilles soient montées dans des montures permettant leur déplacement très précis selon les deux directions latérales et dans la direction axiale. Après avoir adapté la position de la première lentille, on effectue la même chose avec la seconde lentille du télescope de Képler. Le montage est bien aligné lorsque les anneaux de diffraction qui entourent la tache laser restent bien concentriques et sans défaut évident de coma lorsqu'on déplace l'objectif d'avant en arrière.

Les réglages et la forme de la tache doivent également rester bons lorsqu'on déplace le miroir  $M_4$  ou la lentille  $L_1$  dans le montage de la figure 4.10 (de façon équivalente, les miroirs  $M_5/M_6$  ou la lentille  $L_1$  dans le montage de la figure 4.14).

Lorsqu'ayant accompli les étapes antérieures, on s'est assuré du bon alignement, il

ne doit pas y avoir de difficultés pour capturer un objet. Toutefois, au premier abord la capture peut sembler difficile car on n'a pas une indication précise de la position exacte du foyer dans le milieu. Si l'objet que l'on tente de saisir est trop loin de la région focale, alors les forces de dispersion poussent encore plus loin l'objet sans que l'on puisse trouver l'équilibre des forces. La technique optimale que l'on acquiert avec l'expérience consiste à focaliser sur l'objet que l'on souhaite piéger, puis à défocaliser légèrement l'image. Dans ces conditions, on se place d'emblée près d'une situation où l'objet étant suffisamment proche du foyer, les forces de gradient pourront se révéler assez fortes pour contrecarrer celles de dispersion et créer ainsi un piège stable.

# 4.4 Préparation des micro-objets étudiés

Dans ce sous-chapitre, nous abordons maintenant la description des micro-objets étudiés et leur mode de préparation.

#### 4.4.1 Préparation des particules colloïdales de silice

Pour l'obtention des billes de silice, nous avons utilisé la méthode de synthèse sol-gel. La procédure sol-gel est bien décrite dans la littérature [181]. L'avantage qu'on lui attribue le plus souvent est qu'elle conduit à un produit pur et homogène à des températures ambiantes normales. La synthèse sol-gel a lieu en présence d'espèces moléculaires réactives en suspension dans un solvant (le sol). Puis, par un processus de condensation on arrive à la formation d'une structure solide et poreuse (le gel) imprégné de liquide. Ce processus se base en particulier sur la condensation de molécules de  $Si(OH)_4$ , utilisant comme matière première un silicate (généralement, silicate de sodium) ou un alcoxisilane de formule générale  $Si(OR)_4$  où R représente un groupe organique de formule générale  $C_nH_{2n+1}$  qui peut être par exemple le plus souvent  $CH_3$ ,  $C_2H_5$  ou  $C_3H_7$  (dans notre cas  $C_2H_5$ ). C'est par l'hydrolyse de cette molécule qu'a lieu l'obtention des molécules  $Si(OH)_4$ , à partir desquelles deux réactions chimiques vont se produire quasi simultanément : l'hydrolyse et la condensation, jusqu'à la formation du gel imprégné. La rapidité de l'évaporation du liquide dépend du solvant. Comme les composés organométalliques de silicium ne sont pas miscibles dans l'eau, il est nécessaire d'utiliser un solvant organique pour effectuer la réaction. Le plus commun est d'utiliser comme solvant un alcool ROH dont le groupe Rcorrespond au groupe organique du  $Si(OR)_4$  (dans notre cas, l'éthanol). L'hydrolyse fait

$$C_{2}H_{5}O^{Mm}Si - OC_{2}H_{5}$$
  $H_{2}O$   $C_{2}H_{5}O^{Mm}Si - OH$   $C_{2}H_{5}OH$   $C_{2}H_{5$ 

Fig. 4.18: Réaction d'hydrolyse et de condensation : alkylation et oxolation.

place à la condensation et à la formation d'une molécule d'alcool ou d'une molécule d'eau, selon le type de réaction qui arrive comme schématisé sur la figure 4.18.

La réaction de condensation peut être influencée par l'addition d'un électrolyte ou bien par une modification du pH de la solution, changeant ainsi les conditions de formation ou non de particules. Si la catalyse est acide (par exemple avec addition de HCl), la réaction d'hydrolyse sera plus rapide que celle de condensation et on favorise alors la formation de petites particules (jusqu'à 10~nm) qui peuvent ensuite former des agrégats. Au contraire pour une catalyse basique ou neutre, la condensation des molécules est plus rapide que l'hydrolyse. On favorise ainsi la formation de polymères et donc la croissance de particules plus grosses de 10~à 100~nm. Nous décrivons maintenant les modes opératoires pratiques, en commençant par celui pour l'obtention de particules de silice.

A partir des composés qui apparaissent dans le tableau 4.4, on mélange les 50 mL d'éthanol avec les 12 mL de propoxyde de silicium et on met en action l'agitateur magnétique (nous utilisons une vitesse de rotation de 500 tours/min). Tout de suite après, on ajoute les 12 mL de  $NH_4OH$ . Nous maintenons l'agitation tant que durera la réaction, en utilisant comme critère très approximatif le fait que l'on considèrera la

Composé	Formule chimique	Quantité $(mL)$		
éthanol $n$ propoxyde de silicium solution ammoniacale diluée à 28 % dans l'eau	$C_2H_5OH \ Si(nPRO)_4 \ NH_4OH$	50 12 12		

Tab. 4.4: Ingrédients utilisés pour la préparation des colloïdes de silice pure.

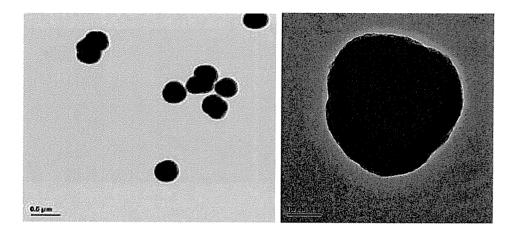


Fig. 4.19: Particules colloïdales de silice de 400 nm de diamètre. Image obtenue avec le microscope électronique à balayage de l'Ecole Polytechnique.

réaction terminée quand cessera l'odeur si caractéristique de l'ammoniaque.

En variant les concentrations de propoxyde de silicium  $Si(nPRO)_4$  et de  $NH_4OH$ , il est possible de changer la taille des particules qui sont obtenues, en faisant attention au temps de réaction afin d'éviter que la concentration en particules n'augmente trop et que les particules ne commencent à s'agréger. Bien que les particules obtenues ne soient pas parfaitement sphériques, l'examen au microscope électronique nous montre des particules sphéroïdales avec un diamètre moyen d'environ  $400 \ nm$  et une dispersion en tailles raisonnable (Figure 4.19). La détermination des dimensions peut être obtenue grâce à des méthodes utilisant la diffusion de la lumière. Ainsi nous avons préparé des échantillons avec différentes concentrations de solutés comme nous le rappelons dans le tableau 4.5. Pour le reste des travaux, nous avons choisi de n'introduire que 5 mL de

Echantillon	$Si(nPRO)_4$ et $NH_4OH(mL)$	Temps de réaction $(min.)$	Dimensions $(nm)$	Figure
Silice colloïdale	5	90-120	85-100	4.20a
	7	120	112-210	4.20b
	12	-	400	4.19

Tab. 4.5: Préparation et dimensions des particules de silice colloïdale que nous avons préparées.

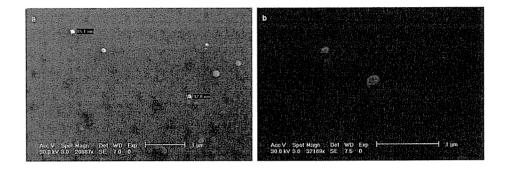


Fig. 4.20: Colloïdes de silice obtenus avec 5 mL et 7 mL de soluté respectivement. soluté, ce qui permet d'obtenir des particules de silice avec un diamètre approximatif de

#### 4.4.2 Préparation de particules colloïdales composites métal-silice

seulement  $100 \ nm$  (Figure 4.21).

On trouve dans la littérature quelques façons de réaliser la synthèse de particules composites du type or-silice [74, 182]. Une méthode appropriée est de créer la couche de silice directement sur les particules d'or par le procédé sol-gel.

Selon cette procédure, nous mélangeons à 50~mL d'éthanol, 5~mL d'une solution déjà préparée d'or colloïdal du type  $Au/NaBH_4$  contenant des particules de 50~nm de diamètre. En maintenant l'agitateur magnétique en rotation, nous ajoutons 5~mL de propoxyde de silicium et finalement 5~mL de solution ammoniacale. Nous maintenons la réaction dans ces conditions pendant approximativement une heure (Tableau 4.6). L'épaisseur de la coquille de silice peut être contrôlée par le temps de réaction et la

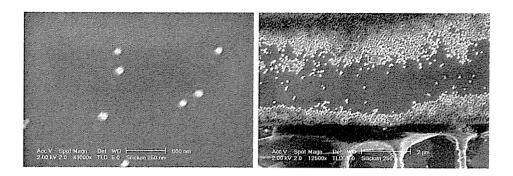


Fig. 4.21: Particules colloïdales de silice de 100 nm de diamètre.

Tab. 4.6: Préparation des particules colloïdales composites or-silice.

Echantillon	$AuNaBH_4 \\ (mL)$	Temps de réaction $(min.)$	Dimensions $(nm)$ cœur-coquille	Figure
Particules composites or-silice	5	60	50-50	4.22

quantité de soluté [183].

Quand la coquille de silice a une épaisseur comparable au diamètre du cœur métallique, les particules composites sont monodisperses comme on peut s'en rendre compte sur les images obtenues en microscopie électronique à balayage. Sur les images de la figure 4.22, on note bien que les particules hybrides obtenues sont assez uniformes et d'une forme proche de la sphère. La forme sphérique de ces particules va dépendre notablement de la sphéricité des particules d'or elles-mêmes. Au cours du processus de formation des particules composites, il n'est pas exclu que le noyau métallique soit formé par des agrégats de colloïdes d'or.

## 4.4.3 Préparation des microcristaux organiques

La molécule précurseur pour la préparation des micro-cristaux étudiés appartient à la famille des Nitro-Benzoxadiazoles (NBD). Pour notre étude, nous avons utilisé la molécule de formule chimique n-octylamino-7-nitrobenz-2-oxa-1,3-diazole, connue aussi

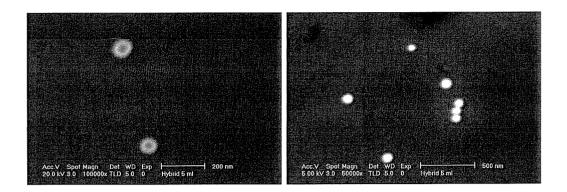


Fig. 4.22: Particules composites or-silice observées au microscope électronique. Images obtenues avec le microscope électronique à balayage du Centre de Micro et Nano Technologies MINERVE de l'Université Paris 11.

Fig. 4.23: Schéma de la structure moléculaire de la molécule NBD-C8.

par le sigle NBD-C8 dont la structure moléculaire est montrée sur la figure 4.23. Cette molécule a été synthétisée dans le groupe de Mme Suzanne Féry-Forgues du Laboratoire des Interactions Moléculaires et de la Réactivité Chimique et Photochimique (IMRCP) à l'Université Paul Sabatier de Toulouse [184].

Un intérêt remarquable de la molécule NBD-C8 est qu'elle possède de bonnes propriétés de fluorescence qui ne disparaissent pas lorsque ces molécules se retrouvent sous une forme cristalline. De manière générale, les molécules amino-NBD sont utilisées comme sondes fluorescentes par exemple pour déterminer la polarité ou l'acidité d'un milieu déterminé.

Les micro-cristaux organiques s'obtiennent par le procédé de reprécipitation [185], connu pour le bon contrôle de la morphologie et des dimensions qu'elle peut permettre des micro-objets formés. Ce contrôle s'obtient en additionnant pendant le processus de

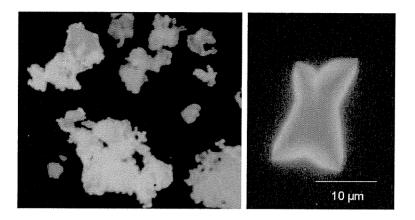


Fig. 4.24: Images en microscopie de fluorescence de grands microcristaux de NBD-C8 obtenus dans l'eau pure à gauche et dans l'eau avec addition à 20 minutes du début du processus de reprécipitation du polymère PAA 5100 g/mol à droite. Images extraites de la thèse de Mouhammad Abyan [189].

reprécipitation différentes macromolécules à différents moments du processus. Des macromolécules onéreuses car difficiles à synthétiser comme les dendrimères ont d'abord été employées [186, 187], mais en fait, un travail plus récent a mis en évidence que des polymères
commerciaux comme le sel de sodium de l'acide poly(acrylique) PAA permettent d'aboutir
à des résultats similaires pour le contrôle du processus de reprécipitation et l'élaboration
de micro-cristaux avec des morphologies relativement bien homogènes [188, 189].

Les cristaux étudiés dans notre travail ont été élaborés en utilisant du PAA 5100 g/mol. La préparation des cristaux que nous avons étudiés sous microscope a été faite avec l'aide de Jean-François Lamère que je tiens à remercier ici.

Pour préparer les micro-cristaux, les molécules de NBD-C8 sont dissoutes dans l'éthanol pur à une concentration de  $10^{-3}$  M. Ensuite une fraction de cette solution concentrée est versée dans un grand volume d'eau qui peut ou non contenir les molécules d'additifs. On maintient une agitation constante et la température est maintenue fixe à  $25~^{0}C$ . La présence de polymères pendant la phase de reprécipitation permet d'obtenir des micro-cristaux parallélépipédiques de différentes dimensions (Figure 4.24).

Les méthodes d'élaboration des cristaux avec lesquels nous avons travaillé sont les suivantes :

#### Preparation des cristaux de type I

1. Dans un récipient de 10 mL, on dissout  $10^{-3}$  M NBD-C8 (PM = 293 g) dans

Tab. 4.7: Caractéristiques principales des micro-cristaux typiques montrés sur la figure 4.25 et dont les formes sont similaires à celles de ceux que nous avons manipulés au cours de notre travail.

Type	$\begin{array}{ c c } & \text{PAA} \\ & (Mol/L) \end{array}$	$\begin{array}{c} \text{NBD-C8} \\ (Mol/L) \end{array}$	EtOH %	Forme	Dimensions $(\mu m)$
I	$3,2x10^{-3}$	$2,0x10^{-5}$	2	Rect. avec deux triangles obscurs	40x15 10x3 7x3
				Rect. avec bords	38x16
II	$3,2x10^{-3}$	$3,73 \times 10^{-4}$	4	Rect. 4 bords fluorescents	25x10 11x5

#### l'éthanol pur.

- 2. Dans un second récipient, on prépare une solution de  $10^{-3}\,M$  d'acide poly(acrylique) (PM = 5500 g) dans de l'eau distillée. En pratique, nous utilisons 6 mg de PAA dans  $20\,mL$  d'eau.
- 3. A 1,96 mL de solution de PAA, on additionne 40  $\mu L$  de la solution de NBD-C8, en agitant constamment.
- 4. La reprécipitation est terminée après 15 minutes.

## Preparation des cristaux de type II

- 1. Dans un récipient de 5 mL, on dissout  $8.10^{-3}~M$  NBD-C8 (PM = 293 g) dans l'éthanol pur.
- 2. A 1,92 mL de solution de PAA, on additionne 80  $\mu L$  de la solution de NBD-C8, en agitant constamment.
- 3. La reprécipitation est terminée après 15 minutes.

La figure 4.25 montre comment on voit quelques uns de ces cristaux en microscopie de fluorescence et la table 4.7 indique leurs caractéristiques principales. Parfois, comme sur

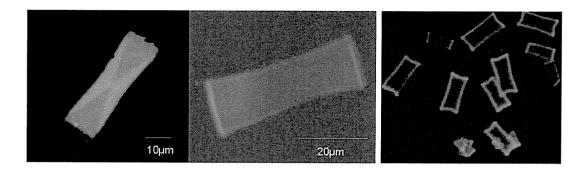


Fig. 4.25: Images en microscopie de fluorescence de microcristaux de NBD-C8 obtenus en présence du polymère PAA 5100 g/mol à une concentration de 5,9.10<sup>-5</sup> M, ajouté au début de la reprécipitation. Images extraites de la thèse de Mouhammad Abyan [189].

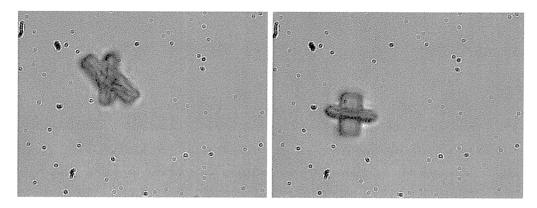


Fig. 4.26: Cristaux en forme de croix observés quelquefois lors de la préparation de cristaux de type I ou II.

la figure 4.26, il apparaît des cristaux enlacés en forme de croix qu'il fut facile d'attraper avec la pince optique.

#### 4.5 Autres échantillons étudiés

En plus des particules colloïdales synthétisées, nous avons utilisé des billes de latex disponibles commercialement. Le tableau 4.8 montre les principales caractéristiques de ces sphères. Ces billes dont la taille est parfaitement calibrée et dont la distribution en taille est très étroite, propre à des échantillons monodisperses, ont été utilisés par nous et par beaucoup d'autres comme le système de référence idéal. Ce sont des sphères parfaites et non absorbantes. Dans la figure 4.27, on peut se rendre compte de la monodispersité,

Fabriquant	MERCK Estapor Microspheres				Molecular Probes			Veigel	
Type	F-Z030	F-X050	F-X100	F-X300	F-Z300	C37161	C37485	C37274	-
Diamètre $(\mu m)$	0,298	0,55	1,05	2,93	3,4	0,02	0,1	1,0	1,1
Ecart-type $(\mu m)$	$\pm 0,005$	$\pm 0.01$	_	-	-	-	-	-	-

Tab. 4.8: Caractéristiques principales des billes de latex utilisées dans ce travail.

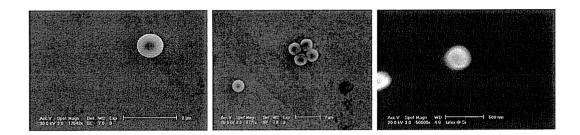


Fig. 4.27: Images en microscopie électronique de sphères de latex commerciales. Images obtenues avec le microscope électronique à balayage du Centre de Micro et Nano Technologies MINERVE de l'Université Paris 11.

de l'homogénéité et de la parfaite sphéricité des billes de latex utilisées. Les billes sont rendues fluorescentes par l'insertion d'un colorant. Bien que mentionnées dans le tableau, les billes de latex d'un diamètre de 20 nm n'ont pu être étudiées car trop petites. Leur fluorescence aurait pu permettre cependant de les voir mais les conditions de détection de notre montage étaient trop limitées.

# 4.6 Mesures sous microscope

Pour caractériser nos échantillons, nous avons procédé à des mesures sous microscopes que nous décrivons dans les sous-chapitres suivants.

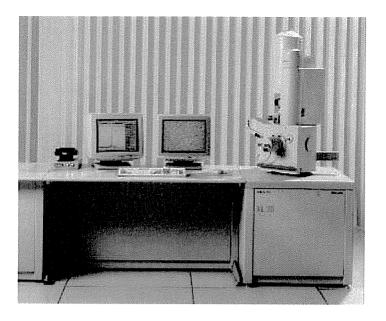


Fig. 4.28: Photographie du microscope électronique à balayage du Centre MI-NERVE de l'Université Paris 11 que nous avons utilisé.

#### 4.6.1 Microscope électronique à balayage

Pour caractériser les particules sphériques ou sphéroïdales utilisées dans notre étude, nous avons fait usage du microscope électronique à balayage FEI/Philips XL30 FEG ESEM du Centre de Micro et Nano Technologies MINERVE de l'Université Paris 11. Une photographie du microscope est montrée sur la figure 4.28. Ce microscope peut atteindre une résolution de 3,5 nm sous une tension de 30 KV et permet un champ de vision d'approximativement  $2x2 \ mm^2$ .

Ce microscope nous a permis de préciser les petites dimensions des particules que nous avons utilisées dans certaines expériences comme illustré sur l'image de la figure 4.29.

#### 4.6.2 Microscope optique

Pour nos expériences, nous avons manipulé deux types de microscopes optiques. Le plus utilisé pour les expériences de pinces optiques a été un microscope inversé NIKON Ellipse 100 équipé d'un objectif ACHROPLAN x100, aussi de NIKON. Pour les observations des micro-objets en fluorescence ou entre polariseurs croisés, nous avons aussi utilisé un microscope droit LEITZ Orthoplan équipé d'un objectif OLYMPUS x100 (Figure

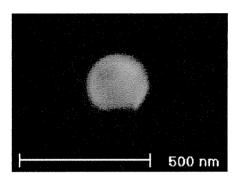


Fig. 4.29: Image d'une bille unique de latex vue au microscope électronique à balayage. La barre d'échelle nous permet d'en évaluer le diamètre avec précision à 240 nm.

4.30).

Grâce à l'emploi de ces microscopes munis de caméras WebCam Philips TouCam PRO II, nous avons pu obtenir des images et des vidéos des micro-cristaux ou des particules capturés dans un piège optique ou déposés à la surface de la lame porte-échantillon (Figure 4.31). Il nous a aussi été possible d'enregistrer les images des taches laser (Figure 4.32). Par le fait d'avoir la possibilité de visualiser les images des objets capturés en même temps que l'on effectue les mesures sur les fluctuations de la particule dans le piège, le microscope optique se convertit en un outil extrêmement utile pour notre expérience.

#### 4.6.3 Microscope optique polarisant

Le microscope polarisant est un microscope muni de lames jouant les rôles de polariseur et d'analyseur entre lesquelles sont placés les objets à étudier (figure 4.33). Le polariseur polarise linéairement la lumière qui atteint l'échantillon et l'analyseur analyse l'état de polarisation de la lumière transmise. En général, polariseur et analyseur sont orientés de sorte que leurs directions de polarisation soient perpendiculaires, on dit que les polariseurs sont croisés. Dans ces conditions, aucune lumière n'est transmise en l'absence d'échantillon. On est donc sur un fond noir, et ce mode d'observation est extrêmement favorable et sensible pour observer des micro-objets présentant des propriétes de biréfringence. En traversant des cristaux biréfringents, la lumière devient elliptique et une fraction est donc transmise au travers de l'analyseur, rendant ainsi le micro-cristal lumineux sur fond noir. Dans les microscopes polarisants commerciaux, la platine porte-objet est circulaire et permet de faire tourner l'échantillon dans le plan

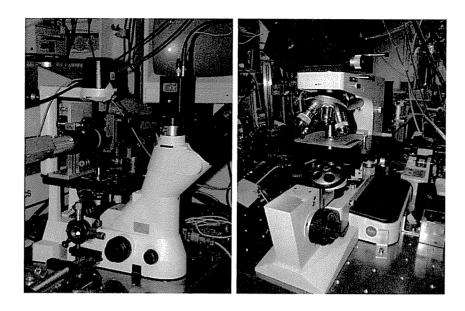


Fig. 4.30: A gauche, photographie du microscope inversé NIKON Ellipse 100 utilisé pour les expériences de pinces optiques. A droite, photographie du microscope droit LEITZ Orthoplan que nous avons utilisé pour imager les micro-cristaux fluorescents, puis modifié pour le transformer en microscope polarisant.

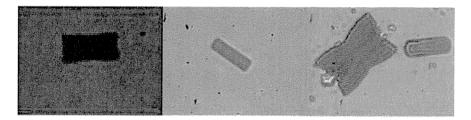


Fig. 4.31: Photographies de micro-cristaux déposés sur la lame porte-échantillon

horizontal autour de l'axe optique du microscope. Ce faisant, ceci permet d'observer les variations de transmission de l'échantillon en fonction de son orientation par rapport aux axes des polariseurs croisés. Au cours d'une rotation de 360 degrés, un cristal biréfringent uniaxe dont l'axe optique serait perpendiculaire à la direction d'observation "s'éteindra" quatre fois, c'est-à-dire deviendra obscur lorsque précisément son axe optique sera parallèle à la direction du polariseur ou de l'analyseur. En effet, dans ces orientations, la lumière transmise ne subit pas de changement de son état de polarisation et ne peut donc être transmise par l'analyseur [190]. Lorsque la direction de l'axe optique est quelconque par rapport aux directions des polariseurs croisés, le micro-cristal apparaît donc comme

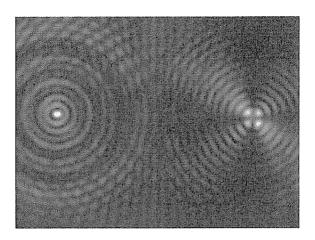


Fig. 4.32: Images de taches laser.

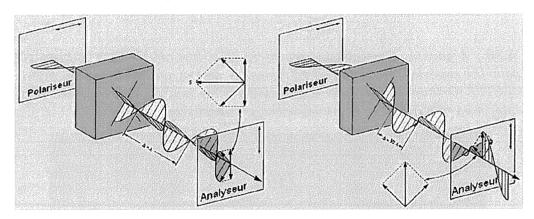


Fig. 4.33: Schéma explicatif de l'analyse d'un cristal biréfringent entre polariseurs croisés dans un microscope polarisant.

"illuminé" et coloré s'il est éclairé en lumière blanche. La couleur résulte d'effets d'interférence entre les composantes polarisées pour lesquelles existe une différence de phase qui dépend pour une part de l'importance de la biréfringence, c'est-à-dire de la différence entre les indices ordinaire et extraordinaire, et pour l'autre part, de l'épaisseur du cristal. Ces particularités des observations en lumière polarisée font que le microscope polarisant est l'outil d'excellence du minéralogiste.

Avec un microscope polarisant, il est possible de préciser les orientations de l'axe optique pour un cristal uniaxial ou des axes optiques pour un cristal biaxial, à partir des figures d'interférences observées. Une situation particulière est celle qui permet d'observer entre polariseurs croisés une croix noire ou des branches d'hyperboles comme sur la figure



Fig. 4.34: Formation des images d'interférences entre polariseurs croisés pour un cristal uniaxial et biaxial à gauche. Observation de l'image des isogyres entre polariseurs croisés pour un cristal de quartz  $(n_e-n_o=0,009)$  et pour un cristal de calcite  $(n_o-n_e=0,172)$  à droite.

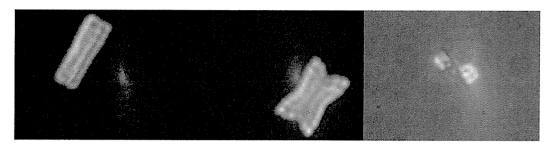


Fig. 4.35: Images de cristaux sous microscope entre polariseurs croisés.

4.34.

Ces observations se font en lumière convergente et lorsque la lumière se propage parallèlement à l'axe optique pour un cristal uniaxe ou à la bissectrice de l'angle formé par les deux axes optiques pour un cristal biaxe. Le nombre d'anneaux qui peuvent être observés est en relation avec le degré de biréfringence, c'est-à-dire la différence entre les valeurs des indices ordinaire et extraordinaire, du cristal. Plus le nombre d'anneaux observés est grand et plus la différence entre les indices de réfraction sera élevée (Figure 4.34). La couleur des cristaux entre polariseurs croisés peut également apporter une information sur les caractéristiques d'anisotropie des cristaux (Figure 4.35).

Une expérience simple qui permet d'observer la croix noire consiste à placer une lame de calcite correctement taillée selon une direction perpendiculaire à son axe optique entre deux polariseurs croisés. En regardant au travers de cet assemblage, on examine la lumière transmise selon la direction de l'axe optique. L'effet est d'autant plus visible que l'on observe le phénomène en lumière convergente, ce qui est facilement réalisé si on place l'assemblage pas trop loin de son œil (Figure 4.36).

Pour nos expériences, nous ne disposions pas d'un microscope polarisant. Nous en

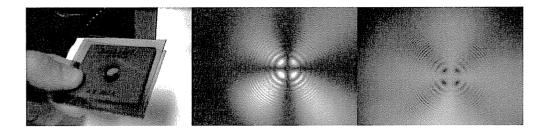


Fig. 4.36: Observation de la croix noire avec un cristal de calcite placé entre polariseurs croisés. Le cristal est taillé pour que l'axe optique soit perpendiculaire aux faces. La croix noire devient une croix blanche si les axes des polariseurs sont parallèles.

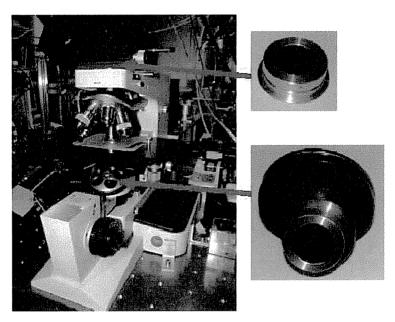


Fig. 4.37: Détails des modifications effectuées pour transformer notre microscope droit en microscope polarisant.

avons donc construit un en adaptant deux polariseurs sur un microscope conventionnel (Figure 4.37). Avec ce microscope, nous avons réalisé des observations de nos microcristaux entre polariseurs croisés. Au cours de nos observations, nous avons pu observer la croix noire pour certaines orientations des cristaux comme montré sur la figure 4.38.

#### 4.6.4 Microscope à force atomique

Le microscope à force atomique qui consiste à déplacer une pointe très fine au dessus de la surface d'un échantillon permet d'obtenir de cette façon une image topographique de

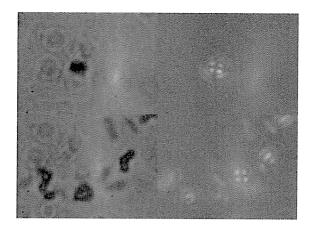


Fig. 4.38: Images de micro-cristaux entre polariseurs croisés obtenues avec notre microscope polarisant. A gauche, les cristaux sont vus en microscopie normale, à droite, entre polariseurs croisés. On notera bien que l'observation de la croix noire coïncide avec une image quasi ponctuelle des cristaux alors que lorsqu'ils sont déposés à plat, ils ont une teinte uniforme.

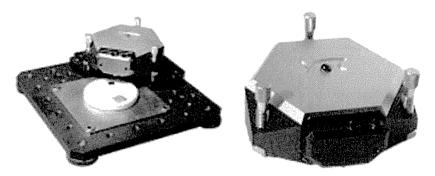


Fig. 4.39: Photographies du microscope à force atomique NanoSurf easy Scan2.

la surface de n'importe quel type de matériau solide, qu'il soit conducteur ou non. Pour notre travail, nous avons utilisé un microscope à force atomique NanoSurf easy Scan2 (Figure 4.39).

En utilisant ce microscope, nous avons pu réaliser une mesure avec la meilleure précision possible des dimensions des micro-cristaux étudiés et obtenir une idée de la régularité de leurs surfaces. Grâce à une lame de silicium marquée sur sa surface par un quadrillage formant une matrice de repérage, il nous a été possible de réaliser une comparaison entre des images optiques obtenues avec le microscope entre polariseurs croisés et celles du microscope à force atomique obtenues avec le logiciel NanoSurf easy Scan 2.

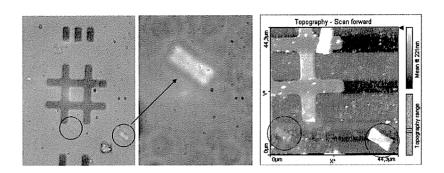


Fig. 4.40: Images de cristaux de type I observés au microscope optique entre polariseurs croisés et au microscope à force atomique.

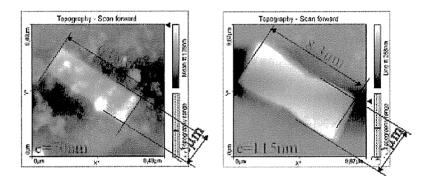


Fig. 4.41: Dimensions de deux des cristaux de la figure précédente mesurées à l'aide du programme NanoSurf easy Scan2 du microscope à force atomique.

Les figures 4.40 et 4.41 montrent quelques unes des observations réalisées.

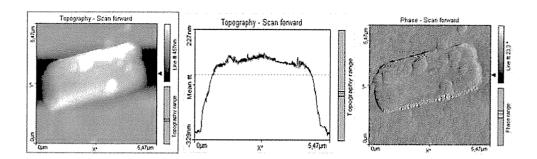


Fig. 4.42: Visualisation des irrégularités de surface sur un cristal de NBD-C8 de type I.

Sur la première, réalisée au microscope optique, apparaissent quelques cristaux dont on peut parfaitement identifier sans ambiguïté la localisation grâce aux marques visibles faites sur la lame de silicium. Sur l'autre, on a l'image topographique des mêmes cristaux obtenue avec le microscope à force atomique. Sur la figure 4.41 apparaissent seulement les deux cristaux sélectionnés sur l'image précédente. Les images de la figure 4.42 permettent d'évaluer les irrégularités de la surface du cristal. De façon générale, on observe que les cristaux présentent une très bonne qualité et symétrie.

# Chapitre 5 Résultats, analyses et discussions

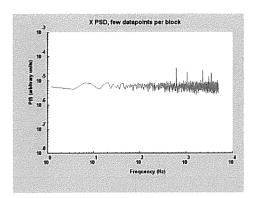
## 5.1 Mesure et calibration du piège sur des billes

Dans une grande majorité des expériences d'applications pratiques des pinces optiques, les auteurs utilisent de petites sphères diélectriques, généralement en silice ou en latex, pour effectuer le calibrage du système. Ces petites sphères se sont transformées en système de référence pour évaluer la faisabilité des mesures, grâce à leur condition de particules non absorbantes et au fait qu'il est possible de les obtenir commercialement avec une géométrie sphérique parfaite et une très faible dispersion an taille. Il existe des valeurs reportées dans la littérature des forces associées à ces sphères pour différentes conditions, c'est pourquoi il n'est pas erroné de les prendre comme système de référence pour calibrer notre montage expérimental.

Avant d'entreprendre une mesure de calibrage, il est important de mentionner que notre système de mesure a été testé pour les bruits électroniques par un contrôle de zéro. On mesure le signal électronique lorsque le détecteur de position est maintenu dans l'obscurité (Figure 5.1). Dans ce cas, on s'attend à détecter un spectre de puissance relativement plat avec éventuellement quelques pics aux fréquences associées aux sources de tension ( $50\ Hz$  typiquement) ou à des fréquences beaucoup plus hautes s'il existe dans l'environnement des perturbations parasites.

La seconde étape est d'obtenir ensuite le spectre de puissance en présence de la lumière diffusée du laser de mesure (Figure 5.1), mais sans la présence d'une particule dans le piège. Dans ce cas, on obtient l'information requise sur les bruits à basse fréquence associés aux problèmes de stabilité de pointé du laser ou plus généralement aux vibrations mécaniques. Sur le graphique de droite de la figure 5.1, c'est le spectre le plus à gauche qui décroît rapidement. On notera sur la même figure, les différences avec le spectre de puissance situé plus à droite lorsqu'une particule est présente dans le piège.

Ce spectre obtenu en présence d'une particule se modifie lorsqu'on varie la puissance



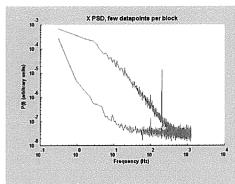
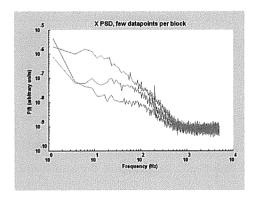


Fig. 5.1: Figure de gauche, spectre de puissance du signal de "zéro" mesuré en l'absence de lumière diffusée sur le détecteur de position. Figure de droite, spectre de puissance mesuré en présence de lumière diffusée en l'absence d'une particule dans le piège, courbe plus à gauche, en présence d'une particule dans le piège, courbe plus à droite.



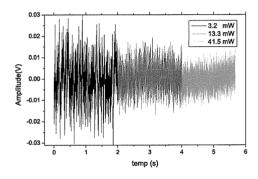
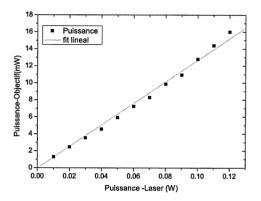


Fig. 5.2: Variation du spectre de puissance en présence d'une particule lorsqu'on augmente la puissance laser incidente. Sur la figure à droite, on présente l'allure correspondante des signaux tels qu'enregistrés par l'oscilloscope.

incidente. A mesure que la puissance augmente, la fréquence de coupure se déplace vers des valeurs plus élevées et l'amplitude du spectre aux basses fréquences diminue comme on le montre sur la figure 5.2.

Il est aussi important de réaliser une courbe de calibrage pour établir la relation entre la puissance délivrée à la sortie du laser et celle disponible au point focal après l'objectif. C'est une mesure délicate que nous avons pu faire grâce à un mesureur de puissance miniature de la firme  $Edmund\ Optics$  et qui présente les caractéristiques suivantes :



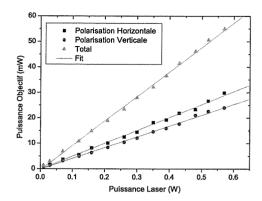


Fig. 5.3: Courbes de calibrage de la puissance mesurée au point focal après l'objectif en fonction de la puissance délivrée par le laser.

gamme couverte de 0,5  $\mu W$  jusqu'à 1 W, surface sensible 50  $mm^2$ , choix de la longueur d'onde entre 0,4 et 1,064  $\mu m$ , précision d'environ  $\pm$  5 %. Cette information concernant l'endroit où la mesure de la puissance a été effectuée sera clairement indiquée lorsque nécessaire dans les figures correspondantes. Nous avons réalisé ce calibrage de la mesure de la puissance pour nos deux montages utilisés et les résultats sont montrés dans la figure 5.3.

Sur le graphe de droite de la figure 5.3, on présente les courbes de calibrage pour les deux polarisations, horizontale et verticale, associées à chacun des faisceaux lasers, un pour chaque piège. Cette mesure a été faite en choisissant une position angulaire du rotateur de polarisation de telle sorte que les puissances des deux faisceaux, celui polarisé horizontalement et celui polarisé verticalement soient approximativement égales. Ces positions ont été déterminées en traçant la courbe de la figure 5.4 où on a mesuré la puissance de chaque faisceau en fonction de l'angle du rhomboèdre de Fresnel.

Après ces deux étapes préliminaires essentielles, nous avons utilisé des billes de latex de 1  $\mu m$  de diamètre (Figure 4.27) pour réaliser le calibrage de la force optique avec le montage décrit au paragraphe 4.3.1 et illustré sur la figure 4.10. La concentration des particules de latex en suspension dans l'eau doit être telle qu'elle permette qu'il soit facile de capturer une bille sans qu'en même temps existent des perturbations considérables de la stabilité du piège quand on augmente la puissance du laser à cause de l'attraction des autres particules trop proches.

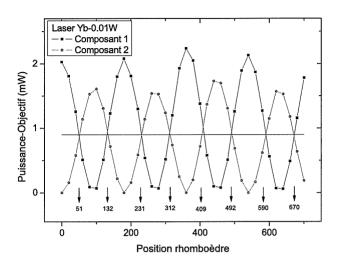


Fig. 5.4: Comportement de la puissance de chacun des faisceaux lasers pour chaque piège, mesurée à la sortie de l'objectif en fonction de l'orientation angulaire du rotateur de polarisation.

Pour éliminer les influences possibles dues à la proximité des parois de la cellule porte-échantillon, les mesures sont effectuées à une distance de 5  $\mu m$  de la surface supérieure de la lame porte-objet. Egalement, la particule est maintenue éloignée de l'interface eau-air, source de turbulences importantes dans le fluide.

Dans ces conditions, nous avons réalisé des mesures pour différentes valeurs de la puissance laser incidente. Le détecteur de position utilisé était le détecteur à effet latéral. Les données ont été enregistrées dans l'oscilloscope avec une fréquence d'échantillonnage de  $10\ kHz$  pendant 1 seconde ce qui correspond à l'acquisition de 10000 points à chaque séquence. Ces données ont été traitées grâce au programme TweezerCalib2.1. De l'ajustement des données expérimentales, on extrait la fréquence de coupure comme montré sur la figure 5.5. A la partie supérieure, on présente les courbes de distribution des positions de la bille dans le piège selon les directions x et y. Les distributions ont l'allure de gaussiennes en relation avec le potentiel harmonique du piège. Les graphiques suivants correspondent aux transformées de Fourier rapide des signaux de chaque canal, et les deux derniers sont les courbes d'ajustement obtenues après réduction des données.

Les résultats de cette mesure pour différentes valeurs de la puissance du laser sont

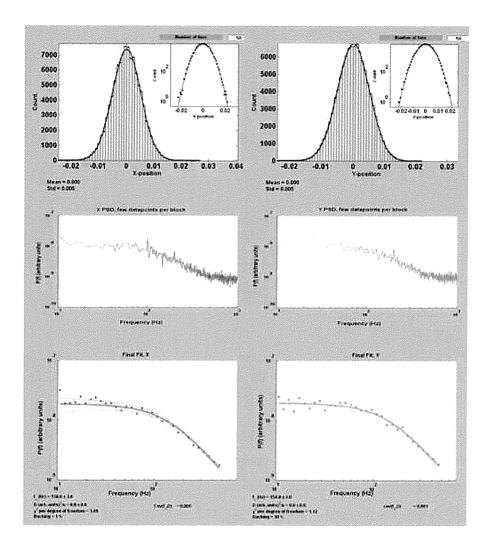


Fig. 5.5: Exemple d'un ajustement des données expérimentales pour une puissance de 30 mW du laser de capture avec le programme TweezerCalib 2.1.

présentés sur la figure 5.6. Chaque point de la courbe est obtenu après un ajustement tel que détaillé précédemment. Dans cette expérience, la puissance rapportée pour le laser est celle mesurée à la sortie de l'objectif.

Les valeurs représentées par  $f_cX$  et  $f_cY$  sont les fréquences de coupure respectivement associées aux composantes X et Y des forces exercées dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation de la lumière. Le fait que ces fréquences de coupure mesurées expérimentalement aient approximativement la même valeur reflète la symétrie du piège et l'alignement correct du montage.

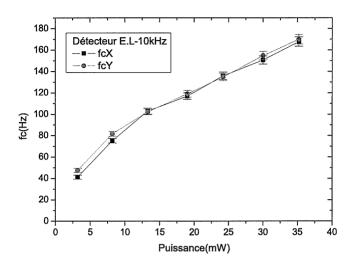


Fig. 5.6: Courbe expérimentale de la dépendance de la fréquence de coupure en fonction de la puissance à la sortie du laser sur une bille de latex de 1  $\mu m$  de diamètre située à 5  $\mu m$  de profondeur.

Ce résultat permet de caractériser la force produite par le piège dans notre montage. Nous pouvons ainsi dire par exemple que pour une puissance en sortie de l'objectif de 30 mW, on peut déduire un coefficient de raideur (Voir l'équation 4.12) du piège valant approximativement 8,2  $pN/\mu m$ , en considérant que le facteur hydrodynamique est  $\gamma=8,4\pm0,1\mu g/s$ , pour une densité de l'eau de 1  $g/cm^3$  et une viscosité cinématique à  $25^0C$  égale à  $0,893.10^{-6}m^2/s$ .

Avec l'augmentation de la puissance, on constate une augmentation approximativement linéaire de la valeur de la fréquence de coupure. Dans le domaine des puissances analysées, on évalue les coefficients de raideur caractérisant la force du piège entre 2,2 et 9,0  $pN/\mu m$  (Tableau 5.1). Les résultats qui apparaissent dans la littérature pour des conditions similaires sont en général du même ordre de grandeur que ceux que nous rapportons ici. Un résumé des valeurs des coefficients élastiques que l'on trouve dans la littérature pour des billes de latex de 1  $\mu m$  de diamètre est présenté dans le tableau 5.2.

Il existe une variabilité des résultats expérimentaux concernant les coefficients de la force optique, essentiellement à cause des nombreux paramètres qui interviennent et qu'il n'est pas toujours possible de contrôler de manière adéquate. Par exemple, l'échauffement

Puissance (mW)	3,2	8,2	13,3	19	24,2	30	35,2
$k_x \ (pN/\mu m)$	2,2±0,1	4,0±0,1	5,4±0,2	6,2±0,2	7,2±0,2	8,0±0,2	8,9±0,2
$k_y \ (pN/\mu m)$	2,5±0,1	4,3±0,1	5,4±0,2	6,3±0,2	7,1±0,2	8,2±0,2	9,0±0,2

Tab. 5.1: Tableau rapportant les valeurs mesurées pour la constante de raideur d'un piège selon les deux directions latérales x et y.

qui peut se produire par suite d'une absorption dans l'échantillon. Ainsi, il a été rapporté que l'échauffement induit par un faisceau laser à une longueur d'onde de 1,064  $\mu m$  dans la région de focalisation est d'environ 7,7  $^{0}C/W$  pour des billes de latex de 1  $\mu m$  de diamètre dans l'eau [194]. D'autres travaux ont étudié la dépendance de la viscosité du milieu avec la puissance du laser due à l'absorption [191, 193]. Il faut dire cependant que les expériences rapportées dans ces travaux concernent des puissances plutôt élevées dépassant souvent le Watt. En comparaison, dans nos expériences, nous avons toujours travaillé à des puissances faibles, excédant rarement 30~mW et nous pouvons donc dire que les effets d'échauffements peuvent être considérés comme négligeables. D'autres facteurs peuvent aussi jouer un rôle dans la comparaison entre divers résultats comme la qualité de l'objectif utilisé et les différences dans la correction des aberrations, notamment géométriques, de ce dernier.

La relation entre la position de la particule dans le piège et la force de piégeage qu'elle ressent est représentée dans la figure 5.7. Cette figure a été obtenue de la façon suivante : la position de la particule est calculée à partir du signal électronique délivré par le détecteur de position supposé donner une réponse linéaire, multiplié par le facteur  $\beta$  de calibration calculé par la formule 4.12. Ainsi, nous avons évalué que pour 3,2 mW, le facteur de calibration est  $\beta$ =5,5 nm/mV. De ce résultat, nous pouvons dire en forme d'exemple que si une particule se trouve écartée de 100 nm de sa position d'équilibre au

Tab. 5.2: Valeurs du coefficient de raideur mesurées pour des billes de latex de 1  $\mu m$  de diamètre dans différentes conditions expérimentales.

Laser	Puissance (mW)	Objectif	Position $(\mu m)$	$k \ (pN/\mu m)$	Méth. calib.	Réf.
Diode Laser 830 nm	5,7	100x O.N. = 1,4 immersion huile	6 6	16,9±0,8 16,6±0,8 8,8±1,4	SP SP-FE	[191]
Diode Laser 830 nm	10	100x O.N. = 1,25 immersion eau	_	1,5~pN	FE	[192]
Nd:YAG 1064 $nm$	32	60x Nikon CFI Plan immersion eau	13	19±0,7	SP	[168]
$Nd: YVO_4 \\ 1064 \ nm$	-	100x O.N. = 1,3 Carl Zeiss immersion eau	6	16	-	[193]

SP : Méthode du spectre de puissance. FE : Méthode de la force d'entrainement.

centre du piège, elle ressentira une force de rappel de 0,25~pN dans la direction y sous une puissance laser de 3,2~mW.

On note aussi que le déplacement maximal que peut avoir la particule de latex de 1  $\mu m$  à 3,2 mW pour les conditions du piège réalisé sera de 170 nm (Figure 5.7). Au delà de cette fluctuation de la position, le piège sera instable et la particule s'échappera, continuant son mouvement brownien. Avec la précision de notre oscilloscope d'acquisition et dans les conditions d'utilisation du détecteur à effet latéral avec lequel nous avons obtenu le résultat de la figure 5.7, nous avons estimé que nous sommes capables de déceler des déplacements relatifs d'au moins 2 nm.

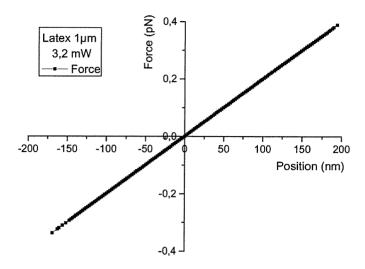


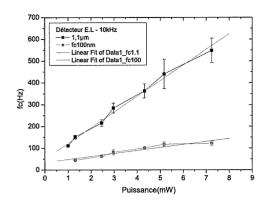
Fig. 5.7: Dépendance de la force optique avec la position de la particule dans le piège pour une puissance au foyer de 3,2 mW.

## 5.1.1 Influence des dimensions et de l'indice des particules

A partir des expressions qui décrivent les forces dans les différents modèles, il est bien établi que ces forces qui créent le piège optique dépendent des dimensions et de l'indice de réfraction des particules capturées.

Pour étudier cette influence, nous avons déterminé le coefficient élastique pour des particules de latex de différentes dimensions et pour des particules de silice et de latex d'égal diamètre. Ces mesures ont été réalisées selon la même procédure que celle décrite au paragraphe précédent. Voyons d'abord la comparaison entre deux particules de latex de  $1,1~\mu m$  et de 100~nm respectivement, comme montré sur la figure 5.8.

Dans les deux graphiques de la figure 5.8, on montre deux courbes qui représentent une augmentation linéaire de la fréquence en fonction de la puissance pour des particules de latex de différentes dimensions, billes de latex de 100 nm et 1,1  $\mu m$  respectivement. Ces mesures ont été effectuées uniquement pour des conditions équivalentes, mais elles se différencient par le type de détecteur utilisé. Dans les deux cas apparaissent des différences remarquables dans le comportement des deux particules d'étude. On note ainsi que les fréquences de coupure, et par conséquent les forces optiques exercées par la lumière sont plus élevées dans le cas des particules de plus grande taille c'est-à-dire, celles en latex de  $1,1~\mu m$  de diamètre. Cette observation est bien heureusement en accord qualitatif avec les modèles et les résultats de la bibliographie. Dans cet exemple, pour le cas du détecteur



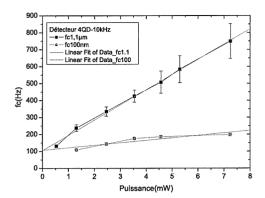


Fig. 5.8: Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance du laser mesurée à la sortie de l'objectif pour des billes de latex de 1,1  $\mu m$  et de 100 nm de diamètre.

à effet latéral, et de la particule de latex de 1,1  $\mu m$ , on obtient un coefficient élastique qui varie entre 6,4 et jusqu'à 31,9  $pN/\mu m$  tandis que pour les billes de latex de 100 nm, on obtient des valeurs comprises entre 0,2 et jusqu'à 0,6  $pN/\mu m$ , soit 50 fois plus petites (Tableau 5.3). Au fur et à mesure qu'augmente la puissance du laser de capture, cette différence entre les deux particules, c'est-à-dire, la différence dans l'efficacité du piège est augmentée. Dans le second cas, avec le détecteur à quatre quadrants, nous observons le même effet avec la différence que les valeurs de fréquence obtenues pour les mêmes valeurs de puissance du cas précédent sont supérieures. Nous discuterons plus en détail ce point plus loin dans une comparaison des deux types de détecteur de position. Nous pouvons cependant dire dès à présent que cette différence reflète les caractéristiques : dimensions de la surface sensible, bande passante électronique très dissemblables des deux détecteurs. Néanmoins, pour comparer avec la mesure précédente, nous déduisons pour le cas de la particule en latex de 1,1  $\mu m$  un coefficient élastique compris entre 7,6 et 43,6  $pN/\mu m$  tandis que pour celle en latex de 100 nm, on obtient une valeur variant entre 0,6 et 1,1  $pN/\mu m$ , soit 40 fois plus petite (Tableau 5.3).

Considérons le cas de particules plus grandes soit de 3,4  $\mu m$  de diamètre, c'est-àdire plus grandes que la longueur d'onde de la lumière de capture. La figure 5.9 montre la comparaison des résultats obtenus avec ceux mesurés sur des billes de latex de 100~nm de diamètre.

Il est difficile de comparer les mesures de forces sur des particules ayant une trop

Tab. 5.3: Comparaison entre les valeurs obtenues des constantes élastiques avec chaque détecteur de position pour des billes de latex de différentes dimensions.

Latex	Puissance $(mW)$	$k( ext{Effet lat\'eral}) \ (pN/\mu m)$	$k( ext{4-quadrants}) \ (pN/\mu m)$			
100 nm	1,3 à 7,3	0,20±0,02 à 0,6±0,06	0,6±0,06 à 1,1±0,04			
$1,1 \ \mu m$	0,5 à 7,3	$6,4\pm0,3$ à $31,9\pm3,2$	$7,6\pm0,3$ à $43,6\pm5,9$			
$3,4~\mu m$	1,5 à 8,6	2,7±0,4 à 10,4±0,7				

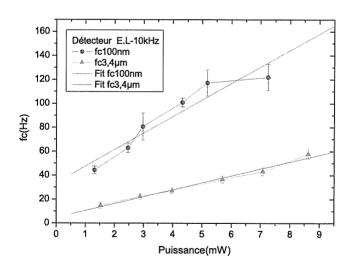


Fig. 5.9: Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour des billes de latex de 3,4  $\mu m$  et de 100 nm de diamètre.

grande différence en taille, pour lesquelles les descriptions théoriques considèrent des régimes différents d'interaction. Ainsi on attend que l'efficacité du piège augmente avec le diamètre de la bille comme le cube du diamètre pour des particules dans le régime de Rayleigh, alors que pour des particules de grande taille, la force devient pratiquement indépendante de la taille dans le régime de l'optique géométrique. En fait, il demeure des désaccords entre la théorie et l'expérience comme cela a déjà été rapporté par exemple par Felner et col. [195]. Ces auteurs ont mesuré que les efficacités de piègeage sont dans un rapport de 4 pour des billes de latex de 1  $\mu m$  et de 0,3  $\mu m$ , et d'environ 20 entre des billes de 3  $\mu m$  et de 0,3  $\mu m$ . Ces résultats sont tout à fait en accord avec nos propres observations et cela est satisfaisant, mais il n'est pas facile de les ajuster quantitativement avec les prédictions théoriques. Les auteurs soulignent l'importance de la proximité des parois de la cuvette qui contient l'échantillon liquide, mais aussi le rôle des aberrations sphériques au point focal du faisceau laser.

Il est intéressant de souligner que la même expérience effectuée avec deux détecteurs différents conduit à des résultats différents, bien que non contradictoires. Les valeurs de la fréquence de coupure pour les particules sont légèrement différentes. De ces résultats dérive une analyse intéressante sur l'influence du détecteur utilisé pour la détermination des paramètres du piège optique, discussion que nous reprendrons plus loin à l'issue du paragraphe suivant.

Un autre paramètre qui influe sur l'efficacité du piégeage est l'indice de réfraction de la particule. Considérons un exemple où nous comparons les résultats obtenus pour des particules de latex et de silice de même dimension 100 nm. Les mesures ont été faites avec le détecteur à quatre quadrants et la puissance est mesurée à la sortie de l'objectif. Les résultats sont présentés sur la figure 5.10.

On note que les fréquences de coupure sont plus hautes pour les particules de latex dont l'indice de réfraction est plus élevé. Les valeurs correspondantes des coefficients élastiques pour le cas des deux types de particules sont rapportées dans les tableaux 5.3 et 5.4. Comme on peut l'observer, les valeurs de k pour les sphères en latex varient pour le domaine de puissances utilisées entre 0,6 et 1,1  $pN/\mu m$ , tandis que pour celles en silice, pour le même domaine de puissances, elles varient entre 0,11 et 0,36  $pN/\mu m$ . Notez cependant que dans le tableau correspondant, on a reporté les valeurs pour un domaine plus grand de puissances. Ceci indique clairement que le rapport mesuré des coefficients

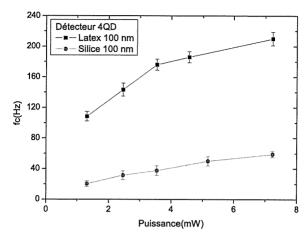


Fig. 5.10: Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour des sphères de latex et de silice de 100 nm de diamètre.

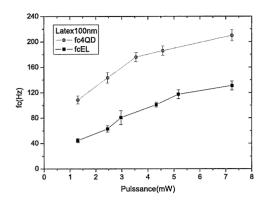
élastiques pour des particules de latex et de silice varie autour d'une valeur moyenne de 4. Dans le paragraphe 3.2.2 du chapitre sur les considérations théoriques, nous avions procédé à des évaluations des forces de gradient pour ces particules et estimé qu'il devait être d'environ 2,2, une valeur raisonnablement en accord avec les résultats de nos mesures expérimentales.

#### 5.1.2 Détermination de la force optique avec différents détecteurs de position

Nous présentons les résultats de l'expérience précédente de telle sorte que nous puissions comparer les différences dans les fréquences de coupure qui résultent de l'utilisation de détecteurs différents (Figure 5.11).

Dans ce cas, il peut être indiqué que la fréquence déterminée pour les particules de latex de 100 nm avec le détecteur à quatre quadrants est en apparence jusqu'à 2 fois plus grande que celle mesurée avec le détecteur à effet latéral pour un domaine de puissances allant de 1,3 à 7,3 mW. Ainsi, on a mesuré des valeurs du coefficient élastique comprises entre 0,6 et 1,1  $pN/\mu m$  pour le détecteur à 4 quadrants et entre 0,2 et 0,6  $pN/\mu m$  pour celui à effet latéral lorsque la puissance à la sortie de l'objectif varie entre 1,3 et 7,3 mW. Pour des particules de latex de 1,1  $\mu m$ , les différences se maintiennent mais sont plus faibles, se révélant approximativement 1,4 fois plus élevées avec le détecteur à quatre quadrants.

Les valeurs mesurées avec le détecteur à quatre quadrants semblent toujours plus élevées que celles obtenues avec le détecteur à effet latéral. Nous pensons que les différences



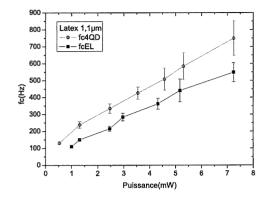
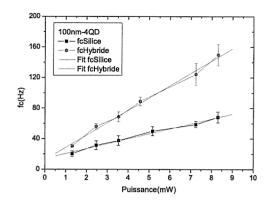


Fig. 5.11: Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance à la sortie de l'objectif pour des sphères de latex de 100 nm de diamètre et de 1,1  $\mu$ m, mesurée avec le PSD à effet latéral et le PSD à 4 quadrants.

observées sont dues aux caractéristiques très différentes des deux types de détecteurs et cela, au regard de deux paramètres importants : la taille de la surface sensible d'une part, le temps de réponse d'autre part (Tableau 4.3). Ainsi, le détecteur 4 quadrants est beaucoup plus sensible aux mouvements rapides et de faible amplitude de la particule dans le piège que ne peut l'être le détecteur à effet latéral, beaucoup plus lent. Selon cette analyse, le PSD à effet latéral serait moins adapté à la mesure des forces du piège optique et la photodiode à quatre quadrants doit être préférée. Soulignons cependant l'avantage de la grande surface de détection du détecteur à effet latéral qui facilite les problèmes d'alignement. Enfin, insistons sur le point capital que, pour des études comparatives telles que celles présentées dans ce travail, l'usage de l'un ou l'autre détecteur de position n'entache pas les conclusions obtenues. On retiendra cependant que, s'agissant de comparer les résultats obtenus par différents auteurs, la prudence s'imposera selon le type de détecteur qui aura été utilisé.

### 5.1.3 Force de capture optique sur des systèmes hybrides

Pour étudier l'influence d'une structure interne sur l'efficacité de la capture optique, nous avons utilisé des particules colloïdales composites telles que le rayon du noyau métallique d'or soit approximativement égal à l'épaisseur de la coquille de silice. Nous sommes donc dans le cas où le rapport a/r vaut 0,5 avec les notations du paragraphe 3.3



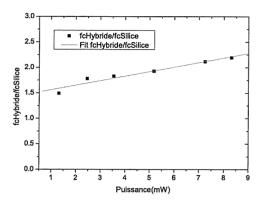


Fig. 5.12: Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance du laser mesurée à la sortie de l'objectif pour des sphères de silice et des particules composites or-silice de 100 nm de diamètre.

sur les particules sphériques composites, dans le chapitre sur les considérations théoriques.

Ainsi, avec la procédure précédente, nous avons mesuré les constantes de raideurs pour des particules hybrides de 100 nm de diamètre, comme illustré sur la figure 4.22. Nous comparons ces résultats avec ceux obtenus avec des particules homogènes de silice pure de mêmes dimensions. Les valeurs de la fréquence de coupure dépendent de la puissance incidente comme rapporté sur la figure 5.12.

Les courbes du graphique de la figure 5.12 montrent que pour des particules situées à une même profondeur dans l'eau, avec la différence que les unes ont une structure interne avec un cœur métallique et les autres non, on note des différences appréciables dans l'efficacité du piège optique. Ce qui est intéressant est que pour les particules hybrides la fréquence de coupure, et par conséquent la force du piège optique, est considérablement plus grande au fur et à mesure qu'on augmente la puissance. Ceci veut dire que pour des dimensions plus petites de ces particules, il est possible d'obtenir des forces plus grandes que celles habituellement attendues dans le cas de particules qui n'ont pas la structure interne métallique. Nous pouvons dire que l'introduction d'un noyau métallique dans une particule diélectrique transparente contribue à l'obtention d'une force environ 2 fois plus forte pour des puissances au point focal de l'ordre de 6 mW comme cela apparaît sur l'évolution du rapport des fréquences de coupure avec la puissance montrée sur le graphe de droite de la figure 5.12. Quantitativement, le coefficient élastique varie de 0,2 à 0,8  $pN/\mu m$  pour les particules or-silice et de 0,11 à 0,36  $pN/\mu m$  pour celles de silice pour

Particules	Dimension $(\mu m)$ Puissanc $(mW)$		Position $(\mu m)$	$k \ (pN/\mu m)$	$k_{hybride}/k_{silice} \  ext{moyen}$	
Silice	0,1	1,3-8,3	5	0,11±0,02 à 0,36±0,03	2.0	
Hybrides	0,1	1,3-8,3	5	$0,20\pm0,01$ à $0,8\pm0,07$	2,0	

Tab. 5.4: Comparaison entre les valeurs de la constante élastique mesurée pour des colloïdes de silice ou hybrides or-silice de même diamètre moyen.

une variation de puissance entre 1,3 et 8,3 mW (Tableau 5.4). On note que le rapport des coefficients élastiques augmente légèrement de 1,5 à 2,2 pour la plage de puissance considérée.

Ce résultat est heureusement conforme à ce que nous espérions et est encourageant dans la perspective de développer des domaines d'application à partir de ces particules composites qui, pour des dimensions plus petites qu'une particule homogène pourront être plus facilement capturées grâce à la présence en leur sein d'une structure interne conductrice. Il est remarquable que le facteur d'accroissement que nous avons mesuré est tout à fait compatible avec nos prédictions théoriques faites au paragraphe 3.3 dans le cadre du modèle de Rayleigh valable pour la taille des particules étudiées.

Peu de travaux portant sur une mesure précise des forces de piégeage optique sur des particules composites ont été rapportés à ce jour, notamment concernant des particules avec un noyau métallique entouré d'une coquille diélectrique. A notre connaissance, le travail le plus proche de celui présenté ici est celui du groupe de Raoul Kopelman [74]. Dans leur article, comme nous-mêmes, les auteurs utilisent une méthode de mesure basée sur le spectre de puissance et font une analyse en fonction de la puissance incidente. Ils comparent plusieurs particules composites avec différentes tailles et composition, mais à la différence de notre propre travail, ils ont utilisé des colloïdes formés par un cœur de silice entouré d'une enveloppe métallique d'argent ou d'or, la couverture métallique pouvant être soit complète, soit seulement partielle, en particulier en ne couvrant que seulement 50 % de la surface totale. Leurs résultats concernant les mesures de la fréquence de coupure sont relativemnt peu clairs sinon dans le fait qu'ils n'observent pas d'accroissement net de

la force élastique. Il est remarquable que pour les particules hybrides qu'ils ont étudiées avec une structure inverse de la nôtre, ils n'obtiennent en aucun cas un accroissement de l'efficacité du piégeage.

Dans notre cas, nous n'avons pu étudier qu'un seul type de particules composites avec principalement une seule taille et un ratio rayon cœur sur rayon total de l'ordre de 0,5. Nos mesures ont été refaites maintes fois en des jours différents et avec des réglages variés, elles ont toujours montré un accroissement positif de la force du piège en faveur des particules hybrides à cœur métallique. Cependant, la comparaison de notre travail avec celui du groupe de Kopelman, notamment par rapport à leur non-observation d'un effet d'accroissement de l'efficacité du piégeage dans le cas de particules diélectriques encapsulées dans une enveloppe métallique, nous conforte dans l'idée de conclure que même si un effet important d'augmentation ne pouvait être indubitablement confirmé, l'augmentation par un facteur 2 que nous avons observée restant modeste, une influence due à la présence du noyau d'or métallique existe nettement et en tout cas, cet effet s'ajoute aux autres intérêts que nous avons déjà soulignés en faveur de ces objets composites.

## Remarque importante

A ce point, il nous faut attirer l'attention sur un point important concernant les résultats portant sur la mesure de la fréquence de coupure que nous avons détaillés dans les pages précédentes. Si nous observons avec attention les graphiques montrant l'évolution de la fréquence de coupure avec la puissance du laser de capture mesurée à la sortie de l'objectif, nous notons que l'extrapolation à puissance nulle de l'ajustement linéaire des données expérimentales ne passe pas toujours par l'origine, même si dans un certain nombre de cas, elle s'en approche encore sensiblement. Il peut sembler normal de considérer qu'à puissance nulle, c'est-à-dire lorsqu'aucune force optique n'est appliquée à la particule, la fréquence de coupure soit également nulle. Cependant, plusieurs facteurs sont à considérer pour éclaircir ce point.

Tout d'abord, il convient d'insister sur le fait que les mesures absolues de la force optique sont très délicates et difficiles. D'autre part, nous n'avons pas du tout exploré le domaine des puissances laser incidentes inférieures à  $0.5\ mW$ , domaine qui correspond à des fréquences de coupure proches de  $10\ Hz$  ou de la dizaine de Hz pour la raison principale que, dans ce domaine de fréquences, les bruits d'origine instrumentale associés aux fluctuations du laser, aux réinjections optiques et aux vibrations mécaniques ou acous-

tiques deviennent considérables, si bien que devenant dominants, ils conduisent à des évaluations des fréquences de coupure entachées d'incertitudes importantes. De plus, si nous considérons le cas d'un piège très faible, à puissance quasi nulle, dans lequel le mouvement de la particule dans le puits de potentiel harmonique très évasé devient très ample, la particule se trouve de toute façon soumise au mouvement brownien ce qui contribue à un signal non nul sur le détecteur, un signal correspondant à une fréquence de coupure distincte de zéro.

Un autre élément à préciser est le suivant : le domaine des puissances utilisées dans la majorité des cas ne dépasse pas les 9 mW, ce qui représente un intervalle de puissances réduit pour permettre d'estimer avec précision la pente de la dépendance linéaire déduite des résultats expérimentaux. Pour réduire les imprécisions, il eut été convenable que chaque point présenté soit la moyenne de plusieurs points de mesure expérimentaux, mais malheureusement, la procédure même de ce type de mesure, chacune étant le résultat d'un algorithme complexe mettant en jeu des transformées de Fourier, ne facilite pas la réalisation de plusieurs relevés pour les mêmes conditions de puissance, d'autant que cela demanderait un temps trop long au cours duquel, notamment pour les puissances élevées, il y aurait un risque certain que la mesure ne puisse être valable par suite d'autres causes possibles de perturbation comme la présence d'autres particules à proximité, voire la capture d'une seconde particule dans le piège étudié.

Il faut enfin noter que si les modèles les plus simples prédisent une dépendance liéaire de la force de capture, c'est-à-dire de la fréquence de coupure avec la puissance, rien ne dit que des modèles plus élaborés prenant en compte l'influence de perturbations dans le domaine des faibles puissances garantirait encore une telle dépendance. En outre, d'autres auteurs ont parfois rapporté des changements de pente de la dépendance linéaire selon le domaine de puissance. Pour terminer, il importe d'insister sur le fait que ces incertitudes qui prévalent dans la région des très faibles puissances du laser de capture, même si elles entachent la précision d'une mesure absolue de la force du piège, n'enlèvent rien aux conclusions, basées sur nos mesures relatives, auxquelles nous avons abouti dans les comparaisons entre les différentes particules simples ou composites que nous avons étudiées.

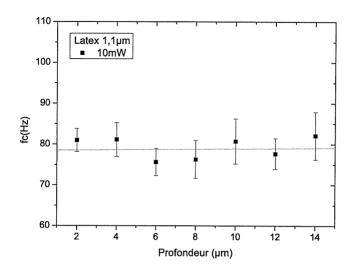


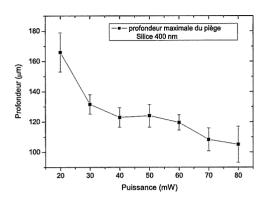
Fig. 5.13: Comportement de la fréquence de coupure avec l'augmentation de la profondeur du piège pour des billes de latex de  $1,1 \mu m$  de diamètre.

## 5.1.4 Influence de la profondeur du piège sur la force de capture

Dans notre expérience, nous avons cherché à faire quelques évaluations sur l'influence des effets hydrodynamiques selon la position du piège dans le fluide. Dans certaines expériences, le domaine d'observation d'un piège stable est réduit à un domaine compris entre 2 et 14  $\mu m$  par rapport à la surface supérieure de la lame porte-échantillon (Figure 5.13). Par contre, dans le cas des colloïdes de silice, il a été possible d'étudier un domaine bien plus ample par le fait que la stabilité du piège se maintient jusqu'à 200  $\mu m$  de profondeur incluse. La figure 5.13 rapporte les résultats obtenus pour une particule de latex de 1,1  $\mu m$  à une puissance de 1,6 mW mesurée à la sortie de l'objectif.

Par une première étude de la profondeur optimale à laquelle on peut obtenir un piège stable, nous avons déterminé la profondeur maximale que l'on peut atteindre pour différentes valeurs de la puissance incidente. Les résultats sont montrés sur la figure 5.14. Chaque point de la courbe est la moyenne de trois mesures expérimentales.

Il est notable que l'augmentation de la puissance diminue la distance à laquelle on peut obtenir un piège stable. Quand on augmente la puissance pour une même particule attrapée, les forces de dispersion augmentent plus rapidement que les forces de gradient, comme nous l'avons commenté au paragraphe 3.2 traitant des considérations théoriques,



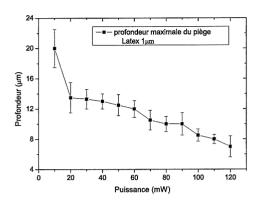


Fig. 5.14: Dépendance de la profondeur du piège avec la puissance mesurée à la sortie du laser.

jusqu'à ce qu'arrive le moment où les forces de dispersion sont tellement favorisées qu'elles ne peuvent plus être contrecarrées par celles de gradient et la particule s'échappe du piège. Ces effets sont plus sensibles quand on travaille dans des positions plus éloignées des parois comme observé dans les résultats obtenus. Par exemple, pour des billes de latex de 1  $\mu m$  de diamètre, la distance de travail à 10 mW est de 20  $\mu m$ , et quand on travaille avec 120 mW, il est seulement possible de piéger des particules situées à seulement 7  $\mu m$  de profondeur. Cependant, répétons-le, avec les particules de silice, nous avons observé que les distances de travail pouvaient être notablement plus grandes. Par exemple, nous avons noté qu'il était encore possible de travailler avec des billes de silice de 400 nm de diamètre jusqu'à 80 mW et plus de 100  $\mu m$  de profondeur. La différence de taille des particules ne modifie pas la conclusion obtenue.

Cette observation n'a pas été antérieurement reportée à notre connaissance dans la littérature. Pour expliquer ce comportement observé près des parois et à relativement forte puissance, on peut penser à des influences hydrodynamiques dues à un accroissement d'un comportement turbulent avec une augmentation de chaleur (absorption par le milieu, la paroi de verre ou la particule). Une autre raison pourrait être associée à l'influence de réflexions entre la paroi et la bille, d'autant plus effectives pour accroître l'effet des forces de dispersion que la particule est proche de la paroi et que la puissance incidente est élevée.

Nous avons réalisé une autre expérience pour évaluer le coefficient élastique du

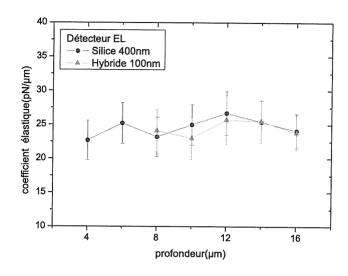


Fig. 5.15: Dépendance de la constante élastique du piège avec la profondeur pour des colloïdes de silice de 400 nm et des particules composites or-silice de 100 nm de diamètre.

piège pour différentes profondeurs en comparant des colloïdes de silice de 400~nm et des particules hybrides de 100~nm de diamètre. Les résultats sont rapportés sur la figure 5.15.

Du graphique de la figure 5.15, il peut être noté une certaine stabilité du piège quant à la valeur de la fréquence de coupure au fur et à mesure qu'augmente la profondeur du piège dans l'eau pour une région qui va de 4 à 16  $\mu m$  pour une puissance fixe de 10 mW mesurée à la sortie du laser. Dans la littérature, on trouve des résultats contradictoires où dans quelques cas la fréquence de coupure apparaît dépendante de la profondeur du piège. Ces différences de comportement sont attribuées à l'influence des aberrations géométriques introduites par les objectifs à immersion dans l'huile, moins dans le cas des objectifs à immersion dans l'eau.

Un autre résultat qui ressort du graphique montré est que les valeurs obtenues pour les fréquences de coupure mesurées pour les sphères de silice de  $400 \ nm$  et les particules hybrides de  $100 \ nm$  sont pratiquement les mêmes, ce qui nous conduit à la conclusion que les forces optiques exercées sur des particules composites de seulement  $100 \ nm$  de diamètre égalent celles subies par des particules de silice de  $400 \ nm$  d'un volume  $64 \ fois$  plus grand! Le tableau  $5.5 \ résume$  les résultats obtenus.

Tab. 5.5: Relevé de résultats de mesures de la constante élastique pour différentes particules en fonction de la profondeur du piège et sous une puissance incidente constante de  $10\ mW$ .

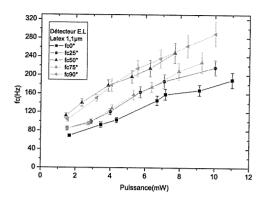
Profondeur $(\mu m)$	Silice 400 $nm$ $k(pN/\mu m)$	Hybrides 100 $nm$ $k(pN/\mu m)$
4 6 8 10 12 14 16	$22,7\pm2,9$ $25,2\pm3,0$ $23,2\pm2,9$ $25,0\pm3,0$ $26,7\pm3,2$ $25,4\pm3,1$ $24,1\pm2,5$	$ \begin{array}{c} -\\ 24,1\pm3,1\\ 23,0\pm3,1\\ 25,7\pm3,6\\ 25,5\pm3,2\\ 23,8\pm2,5 \end{array} $

Nous devons cependant examiner ce résultat avec beaucoup de prudence pour la raison suivante : il a été obtenu au début de nos expériences et il n'a pas été répété par la suite. Certes, il souligne l'effet positif de la présence d'un cœur métallique, mais en comparant des particules hybrides et de silice pure de même taille, nous n'avons obtenu qu'un accroissement par un facteur 2. Comme nous l'avons déjà indiqué et discuté, la comparaison de la mesure des forces optiques entre des particules de dimensions différentes n'est pas satisfaisante en ce sens que l'accroissement de la force exercée sur une particule de plus grand diamètre ne croît pas dans les proportions que prévoient les modèles théoriques simples. Si donc le rapport par un facteur 64 ne saurait être retenu, il n'en reste pas moins que ce résultat corrobore nos observations sur le fait que la présence d'une structure interne métallique améliore les performances du piégeage.

## 5.1.5 Influence de l'état de polarisation de la lumière

Pour analyser l'influence de l'état de polarisation de la lumière sur les forces optiques, nous avons interposé une lame cristalline retardatrice taillée à  $3\lambda/4$  pour la longueur d'onde de 1070 nm sur le trajet du faisceau avant l'objectif comme montré sur la figure 4.14, à la place de la lame  $\lambda/2$  qui y est dessinée.

En tournant la lame d'un angle déterminé, on fait varier l'état de polarisation de



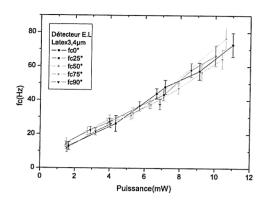


Fig. 5.16: Dépendance de la fréquence de coupure avec la puissance à la sortie de l'objectif pour des sphères de latex de 1,1  $\mu m$  et 3,4  $\mu m$  de diamètre pour différents états de polarisation de la lumière incidente.

la lumière entre une polarisation rectiligne et une polarisation plus ou moins elliptique jusqu'à la polarisation circulaire. Nous avons réalisé cette étude pour des billes de latex de 1,1 et de 3,4  $\mu m$  de diamètre. Les résultats sont montrés sur la figure 5.16 pour des angles de la lame retardatrice compris entre  $0^{0}$  et  $90^{0}$ . Ces angles se réfèrent à la direction de l'axe optique de la lame par rapport à la direction verticale.

Précisons que ces mesures sont délicates. En effet, la rotation de la lame cristalline peut induire de légères fluctuations de puissance ressenties à la sortie de l'objectif, et ceci pour une même puissance délivrée par le laser. Cette constatation implique que pour obtenir des résultats qui puissent être comparés, il a été nécessaire de calibrer le montage pour chaque angle de la lame et ceci pour tout le domaine des puissances utilisées. Les points portés sur le graphe de la figure ont tenu compte de cette difficulté.

La lumière laser polarisée horizontalement, atteignant la lame cristalline dont l'axe optique est orienté à 90°, ressortira après la lame en ayant conservé sa polarisation horizontale. Pour une lame orientée à 45°, la lumière ressortira polarisée circulairement. Il est possible de s'en assurer en effectuant une petite expérience pour connaître l'état de polarisation correspondant à chacun des angles de la lame. Il suffit après la lame retardatrice d'interposer un polariseur en guise d'analyseur. A défaut d'une caractérisation quantitative de l'état de polarisation, on en obtient rapidement une évaluation au moins qualitative.

Du graphique obtenu, on observe que pour des angles de la lame retardatrice compris entre  $0^{\circ}$  et  $90^{\circ}$ , les valeurs de la fréquence de coupure diffèrent pour une même puissance à la sortie de l'objectif dans le cas des billes de latex de 1,1  $\mu m$  de diamètre. Pour les angles de  $25^{\circ}$  et de  $75^{\circ}$ , on obtient des résultats équivalents. La même chose est notée pour les angles de  $50^{\circ}$  et de  $90^{\circ}$ . Ces angles sont en rapport avec un état de polarisation de la lumière déterminé. Bien que le fait de savoir si la force optique induite sera plus grande si la lumière est linéairement ou circulairement polarisée n'apparaisse pas très concluant, il est intéressant de voir ce qu'il advient dans les cas où la dimension de la particule devient ou très petite ou très grande devant la longueur d'onde de la lumière utilisée.

C'est l'étude que nous avons menée sur des billes de latex de 3,4  $\mu m$  et qui est montrée sur le second graphique de la figure 5.16. Il peut être observé que pour des sphères de cette taille, à la différence du cas précédent, il n'apparait pas de modifications appréciables pour le même domaine d'angles étudié, entre 0 et 90 degrés. A partir de nos résultats, nous pouvons donc conclure que pour des particules grandes par rapport à la longueur d'onde, l'état de polarisation de la lumière n'influence pas l'efficacité du piège.

Dans la littérature, il a été publié un calcul numérique qui prédit une légère dépendance de la force latérale du piège en relation avec la direction de la polarisation de la lumière pour des billes de latex de 5  $\mu m$  [129]. Ce résultat est montré sur la figure 3.9 du paragraphe 3.5.2. Nos mesures effectuées sur des particules d'un diamètre de 3,4  $\mu m$  ne confirment pas cette dépendance, mais il est peut-être difficile de conclure.

## 5.1.6 Analyse et discussion des résultats

En forme de résumé, et en extrayant les résultats les plus significatifs, nous discutons et concluons sur les résultats et les observations que nous avons effectuées concernant l'étude des particules colloïdales.

Grâce au montage de pinces optiques que nous avons construit, la mesure des forces optiques sur des particules sphériques dont les dimensions peuvent varier entre quelques 100~nm et plusieurs  $\mu m$  est possible. Un résultat certainement important concerne l'observation d'un piégeage efficace même sur les plus petites particules contenant un noyau d'or. Pour les nanoparticules hybrides or-silice, la constante élastique du piège optique expérimentalement mesurée est plus forte que pour les nanoparticules de silice avec un diamètre semblable, et cette différence augmente avec la puissance du laser utilisé pour

le piégeage. L'augmentation d'un facteur 2 que nous avons mesurée expérimentalement se trouve être en remarquable accord avec les prédictions d'un modèle simple élaboré dans le cadre du régime de Rayleigh et fondé sur l'accroissement de la polarisabilité de la particule dû à la présence du noyau métallique. Cependant, plus de travail sera encore nécessaire pour rendre la comparaison plus pertinente en utilisant des particules avec le même diamètre extérieur mais des compositions intérieures différentes.

Nous avons rapporté nos mesures en fonction de l'influence du diamètre des billes, de l'indice de réfraction et de la direction de la polarisation de la lumière. Comme attendu, l'efficacité du piégeage augmente avec la taille de la particule mais l'accord n'est pas quantitativement correct avec les prédictions théoriques. Par contre, les observations sont conformes pour ce qui concerne l'influence d'un changement de l'indice de réfraction. Concernant l'influence de la polarisation, nous avons noté un effet pour des sphères de latex d'un diamètre de 1,1  $\mu m$ , tandis que nous n'avons pas observé de changement pour des sphères de latex avec un plus grand diamètre de 3,4  $\mu m$ . Probablement ce résultat reflète le fait que pour des particules de grandes dimensions, dans le régime de l'optique géométrique, la polarisation de la lumière ne joue pas un rôle important, tout comme d'ailleurs le diamètre de la bille.

Un point préoccupant que nous rapportons dans cette étude concerne le choix du détecteur de position pour mesurer les fluctuations de la particule dans le piège optique. Si nous pouvons considérer que les mesures relatives faites à l'aide d'un détecteur de position à effet latéral ou d'une photodiode à 4 quadrants sont équivalentes qualitativement, les valeurs absolues déterminées avec l'un ou l'autre PSD sont différentes. Cette différence reflète essentiellement selon nous les caractéristiques très nettement différentes des deux types de détecteurs, notamment en ce qui concerne leur bande passante et la dimension de la zone sensible. Cette observation, assez peu souvent relevée dans la littérature, est d'importance lorsqu'il s'agit de comparer les mesures rapportées par différents auteurs.

# 5.2 Orientation et rotation des micro-cristaux

# 5.2.1 Caractéristiques optiques des micro-cristaux

Au début de notre travail, nous n'avions que peu de donnés optiques permettant de caractériser les micro-cristaux. Grâce aux travaux menés dans le groupe de Mme Suzanne Féry-Forgues, nous avions les informations concernant les différentes morphologies

possibles pour ces micro-cristaux et des donnés sur leurs propriétés d'absorption et de fluorescence. Mais leurs données structurales n'étaient pas connues et d'ailleurs, à ce jour, leur structure cristalline ne l'est toujours pas.

Nous nous sommes donc efforcés dans un premier temps à collecter des informations afin de mieux caractériser leurs propriétés optiques. Notre première démarche a été de les examiner entre polariseurs croisés à l'aide du microscope polarisant que nous avons adapté.

Il est apparu très vite que ces micro-cristaux étaient des monocristaux puisqu'ils présentaient systématiquement une extinction homogène entre polariseurs croisés. En tournant les cristaux, deux lignes neutres se révélaient, l'une orientée le long de l'axe long des cristaux, l'autre perpendiculairement à cet axe. Cette observation caractérise des cristaux biréfringents, mais à ce stade, nous ne savons s'il s'agit de cristaux uniaxes ou biaxes.

Cette information a été en fait obtenue fortuitement. Lorsqu'après avoir préparé une solution de micro-cristaux et déposé une goutte de celle-ci sur notre cellule porte-échantillon pour l'observer au microscope, on laisse s'évaporer l'eau de la solution, les micro-cristaux se déposent sur la lame support. La très grande majorité des micro-cristaux se déposent à plat ce qui permet de les observer entre polariseurs croisés avec toutes les orientations possibles. Mais il arrive que certains d'entre eux se figent dans une orientation telle que leur axe long soit perpendiculaire à la surface de la lame support. Au microscope entre polariseurs croisés, ces cristaux sont vus avec une lumière convergente dont la direction moyenne de propagation est parallèle à leur axe long. Pour ces cristaux, au lieu d'une illumination homogène, on observe très nettement une croix noire, caractéristique de cristaux biréfringents uniaxes, dont l'axe optique est orienté selon leur axe long.

Cette observation correspond donc à des cristaux dont l'axe long z est orienté dans une direction perpendiculaire aux axes des polariseurs croisés, c'est-à-dire à des cristaux traversés par un faisceau dont l'axe de propagation est parallèle à l'axe z (Figure 5.17). Des situations réalisées, nous en avons trouvé quelques-unes pour lesquelles il est posible d'observer des isogyres avec une distribution approximativement isochromatique (Figure 5.18). Les légères nuances de couleur que l'on note sont liées aux retards produits pour des rayons obliques par rapport à l'axe z du micro-cristal. On peut distinguer jusqu'à 3 isochromes ce qui irait dans le sens d'une biréfringence plutôt élevée, plus que celle du

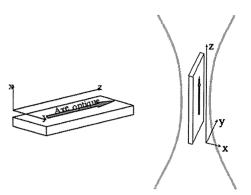


Fig. 5.17: Schéma montrant l'orientation de l'axe optique en fonction des axes du cristal et le positionnement du cristal dans le piège optique.

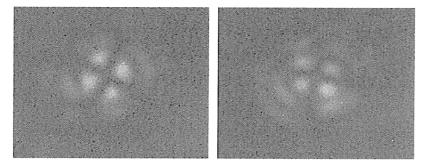


Fig. 5.18: Images de la croix noire observée pour un cristal dont l'axe optique z est orienté parallèlement à la direction de propagation.

quartz, mais moindre que celle de la calcite.

La légère différence de couleurs qui vont du jaune au vert peut être associée au signe optique du cristal, ce qui permet de savoir lequel des rayons, entre le rayon ordinaire et le rayon extraordinaire, voyage à la vitesse supérieure dans le cristal. Comme on le note sur la figure, les quadrants supérieur droit et inférieur gauche de l'isogyre décroissent en couleur, ce qui signifie que le rayon extraordinaire est le rayon rapide et qu'en conséquence, le cristal serait uniaxe négatif.

Toutes ces observations sont importantes dans le sens qu'elles nous donnent une première indication quant à la structure cristalline possible de ces microcristaux. En effet, les seuls systèmes cristallins permettant l'existence d'un axe de révolution supérieur à 2 sont les systèmes quadratique, hexagonal et trigonal qui forment à eux trois la classe des uniaxes.

La structure des cristaux NBD-C8 n'a pas été déterminée à ce jour par une étude aux rayons X, cependant les structures cristallines susceptibles de croître à partir de molécules voisines de cette famille comme la NBD-pyrrolidine ou la NBD-pipéridine ont elles été établies. Dans ces molécules, le groupement  $-N-H(CH_2)_7CH_3$  est remplacé par  $-NC_4H_8$  (pyrrolidine) ou  $-NC_5H_{10}$  (pipéridine) respectivement. Cependant, les cristaux qu'elles forment ont des structures très proches appartenant au système monoclinique avec 4 molécules par maille et au groupe d'espace  $P2_1/c$  rattaché à la classe des biaxes [196]. La morphologie parallélipiédique des cristaux de NBD-C8 nous incline plutôt vers le système quadratique et les groupes d'espaces possibles associés à la présence d'un axe d'ordre 4 comme P4, P4mmm, etc.

Pour régler définitivement cette question, nous suggérons une expérience qui pourrait être tentée : elle consisterait à maintenir un cristal unique de NBD-C8 verticalement par une pince optique dans un faisceau de rayons X généré par le rayonnement synchrotron comme celui dont il peut être possible de disposer autour de la machine "SOLEIL".

Pour compléter ces considérations, signalons qu'en observant la couleur des cristaux entre polariseurs croisés, il devrait aussi être possible de déterminer l'importance de la biréfringence des cristaux. La méthode traditionnelle, bien connue des minéralogistes, consiste à se référer à la table des teintes de Newton ou tableau de Michel-Lévy qui permet d'estimer la biréfringence, c'est-à-dire la différence entre les valeurs des indices ordinaire et extraordinaire, à partir de la couleur du cristal si on en connait son épaisseur (Figure 5.19). C'est dans ce but, pour connaître très précisément l'épaisseur de nos micro-cristaux que nous avons réalisé les expériences couplées où un même cristal est vu au microscope optique entre polariseurs croisés et au microscope à force atomique (Figures 4.40 et 4.41).

La table de Michel-Lévy comporte un abaque en surimpression qui indique la valeur de la biréfringence lorsqu'on connaît le retard et l'épaisseur de la préparation. En abscisse, au bas du tableau, figure le retard R exprimé en millièmes de mm. En ordonnée on a l'épaisseur e de la préparation exprimée en millimètres. Le tableau comporte des lignes obliques correspondant à des valeurs de biréfringence. On l'utilise de la manière suivante : 1. on estime le retard du cristal étudié en comparant sa teinte entre polariseurs croisés avec la teinte identique sur le tableau ; 2. on mesure l'épaisseur du cristal ; 3. on cherche sur le tableau le point de rencontre de la ligne verticale (le retard) et de la ligne horizontale (l'épaisseur) ; 4. à partir de ce point, on suit la ligne oblique la plus proche jusqu'à son

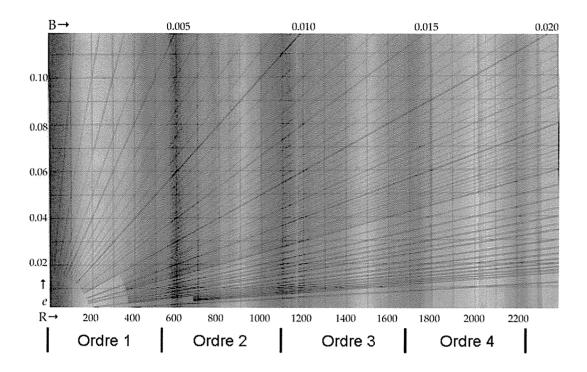


Fig. 5.19: Tableau des teintes de Newton ou table de Michel-Lévy qui permet une évaluation de la biréfringence d'un cristal en fonction de sa teinte entre polariseurs croisés et de la connaissance de son épaisseur.

extrémité supérieure où on lit la biréfringence.

Sur le tableau des teintes de Newton, on remarque une périodicité dans la succession des couleurs : violet, bleu, vert, jaune, orange, rouge, violet, etc. Cette succession de couleurs se répète mais en devenant de plus en plus pâle. On a subdivisé ce tableau en plusieurs parties, chacune étant appelée "ordre". En exprimant le retard, il importe donc de préciser l'ordre de la teinte à laquelle on se réfère.

La difficulté majeure qui rend impossible de tirer une conclusion claire d'une telle approche est que pour les épaisseurs si fines que nous avons mesurées en AFM, de l'ordre de  $100 \ nm$ , la table de Michel-Lévy n'est pas calibrée. Peut-être que pouvons nous supposer, de façon hasardeuse, que les couleurs observées pour des épaisseurs si fines signifient des valeurs élevés de la biréfringence?

### 5.2.2 Orientation des cristaux biréfringents

Maintenant que nous savons comment est orienté l'axe optique des micro-cristaux, nous pouvons mieux caractériser leur orientation dans le piège optique. Les cristaux que

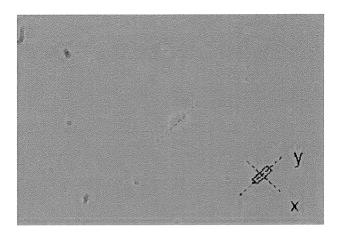


Fig. 5.20: Orientation d'un micro-cristal dans le piège optique observé au micro-scope inversé.

nous avons étudiés sont capturés avec une relative facilité, même dans le cas des plus grands cristaux dont la longueur est supérieure à 7  $\mu m$ .

Tous les cristaux, de type I et de type II, piégés en lumière linéairement polarisée s'orientent de la même façon c'est-à-dire avec leur axe long z selon la direction de propagation de la lumière (Figure 5.17). Ainsi, en pratique, nous observons la face du cristal qui est orientée perpendiculairement à l'axe long z comme on le montre sur la figure 5.20.

Cette observation que des micro-objets de forme allongée, par exemple cylindrique, s'orientent de sorte que leur axe long soit dans la direction du faisceau a été déjà rapportée dans la littérature où il a été montré que pour ce type d'objets, l'angle que peut faire leur axe long avec l'axe défini par le faisceau laser dépend de la longueur de l'objet [197]. L'explication de cette orientation particulière tient simplement au fait qu'un objet allongé sera soumis au niveau de ses extrémités à des forces de gradient, perpendiculaires à la direction du faisceau, tendant à amener ses extrémités dans les régions de forte intensité, c'est-à-dire dans l'axe du faisceau.

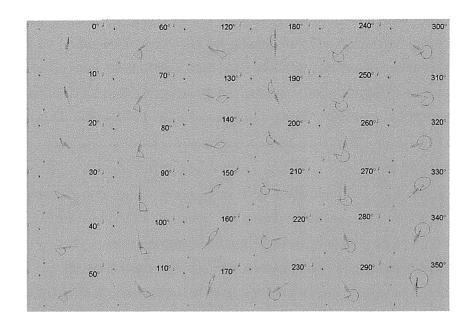
Dans cette orientation, le cristal trouve l'équilibre le plus stable lorsqu'il est au milieu du fluide, mais si nous nous rapprochons de la surface supérieure de la lame porte-échantillon, de sorte que le cristal frôle cette surface, alors dans ces conditions, il est possible de piéger le cristal de telle façon qu'il reste orienté avec son axe long z parallèle à la surface, c'est-à-dire perpendiculaire à la direction de propagation.

Dans la situation d'observation plus habituelle où l'axe long est parallèle à la direc-

tion du faisceau, on observe que l'orientation des axes x et y du cristal est directement contrôlée par l'état de polarisation de la lumière. Ainsi, en contrôlant la direction de vibration du champ électrique de l'onde lumineuse linéairement polarisée, on peut orienter directement les axes x et y du cristal. Pour cela, nous utilisons une lame cristalline taillée à  $\lambda/2$  placée avant l'objectif comme le montre le schéma de la figure 4.14. En faisant tourner la lame retardatrice d'un angle connu, nous agissons sur la direction de la vibration du champ lumineux et on observe clairement comment le cristal se réoriente constamment. Pour une rotation de la lame  $\lambda/2$  d'un angle  $\theta$ , le cristal tourne d'un angle  $2\theta$  comme montré sur la figure 5.21. L'orientation du cristal suit donc bien celle du vecteur polarisation de la lumière puisque, selon les propriétés mêmes de la lame cristalline  $\lambda/2$ , celle-ci fait tourner d'un angle double le vecteur de polarisation incident.

De la même façon que l'on enregistre l'image du cristal pendant que l'on modifie son orientation, nous avons enregistré l'image de la tache laser pour chaque angle de la lame cristalline comme montré sur la figure 5.21. La description de l'état de polarisation dans la région de focalisation n'est pas triviale. Sur la figure, on voit comment se génèrent différentes distributions d'intensité qui changent selon l'angle de la lame cristalline.

Pour expliquer comment les cristaux s'orientent selon la direction de polarisation de la lumière, on pourrait considérer d'abord un mécanisme possible en relation avec les propriétés de biréfringence des cristaux. Des travaux antérieurs ont en effet rapporté l'alignement angulaire de micro-objets biréfringents en présence de lumière linéairement polarisée [77, 92, 95]. Ainsi, considérons un cristal biréfringent dont l'axe optique, supposé dans cet exemple être l'axe lent, soit orienté selon une direction transversale à la direction de propagation du faisceau de piégeage linéairement polarisé comme sur la figure 5.22. Quand la lumière linéairement polarisée, c'est-à-dire avec un moment angulaire nul, atteint l'objet biréfringent, deux rayons l'un ordinaire et l'autre extraordinaire sont réfractés et vont se propager avec des vitesses différentes. La lumière acquiert alors une ellipticité, c'est-à-dire un moment angulaire, qui à cause de la loi de conservation du moment, se transmet au cristal, induisant son orientation par le couple crée selon l'axe perpendiculaire à l'axe optique. En conséquence, le cristal tourne jusqu'à ce que son axe lent, l'axe optique dans cet exemple, coïncide avec la direction de polarisation de la lumière incidente. Lorsque la polarisation est parallèle à la direction de l'axe optique, la lumière est transmise sans changement de son état de polarisation, aucun couple n'est plus créé et l'objet biréfringent



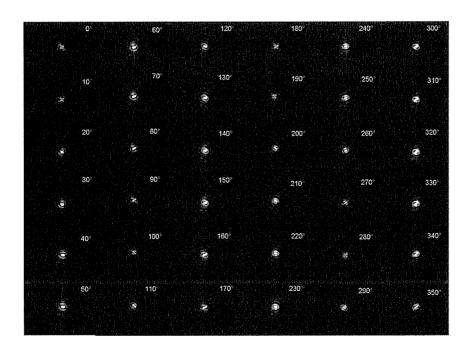


Fig. 5.21: Figure du haut, orientation d'un micro-cristal en fonction de l'orientation de la lame retardatrice. Pour une rotation de la lame  $\lambda/2$  d'un angle  $\theta$ , le cristal tourne d'un angle  $2\times\theta$ . Figure du bas, variations de l'image de la tache laser pour les mêmes angles de la lame retardatrice.

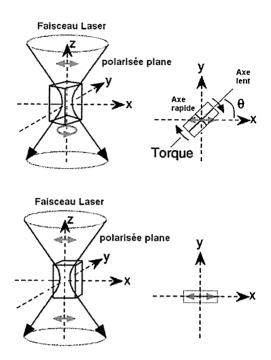


Fig. 5.22: Alignement d'un micro-cristal biréfringent dont l'axe optique est supposé orienté selon la direction de son axe lent, piégé dans un faisceau linéairement polarisé. Ce cas ne correspond pas à celui de nos micro-cristaux dont l'axe optique est orienté selon z!

se maintient dans l'orientation atteinte.

Cependant, cette explication n'est pas valide dans notre cas, bien que, comme nous l'avons démontré expérimentalement, nos cristaux soient biréfringents. En effet, à cause de leur morphologie particulière en forme de parallélépipède allongé et mince, les microcristaux s'orientent systématiquement de sorte que leur axe long, l'axe optique, soit aligné avec la direction de propagation. Pour cette orientation, s'agissant de cristaux uniaxes pour lesquels l'ellipsoïde des indices est de révolution autour de l'axe optique, le cristal apparaît comme isotrope et il ne peut donc naître de couple lié à une biréfringence qui n'existe pas pour cette direction particulière!

Dans notre cas, l'explication est donc différente et à notre sens, elle a simplement à voir avec la morphologie particulière de nos cristaux. Nous proposons un autre mécanisme

simple qui s'appuie sur leur forme parallélépipédique.

Compte tenu de taille des micro-cristaux, nous pouvons nous placer dans les approximations de l'optique géométrique. Nous savons que les forces optiques tirent leur origine du changement de direction des faisceaux lumineux à cause de la réfraction aux interfaces. Plus que la direction des rayons, c'est le changement dans la direction du champ électrique qui est important dans le transfert de quantité de mouvement.

Pour un cristal de section rectangulaire, la force résultante sera d'autant plus forte que l'intensité lumineuse affectée sera grande et que la direction du champ électrique sera adéquate. En effet, comme montré sur la figure 5.23, les cristaux s'orientent avec leur axe long dans la direction de propagation et par rapport au faisceau, nous dirons qu'ils sont "vus" par le dessus! Ils ont donc un grand et un petit côté. Comme l'intensité réfractée sera plus grande selon le grand côté que selon le petit côté, on s'attend à ce qu'une force soit générée perpendiculairement à la direction du grand côté. Cependant, pour un faisceau polarisé selon la direction "sud-nord", aucun moment ne sera transféré, seulement selon le petit côté. Par contre, le transfert et donc la force engendrée sera importante pour une polarisation "ouest-est". La polarisation de la lumière étant fixée, c'est donc le cristal qui s'orientera sous l'influence de ces forces de sorte que la direction du grand côté se place perpendiculairement à la direction du champ électrique, c'est-à-dire à la polarisation de la lumière. Certes la description précise des forces doit être en réalité plus compliquée puisque nous sommes en présence d'un champ fortement focalisé, mais l'idée de l'origine des forces nous semble qualitativement correcte.

S'agissant de rendre compte de la rotation, nous pouvons appliquer le même raisonnement mais dans le cas d'une lumière elliptiquement polarisée, c'est à dire dont le champ peut être décrit par deux composantes orthogonales, l'une "sud-nord" et l'autre "ouest-est" agissant simultanément et en quadrature de phase. L'action conjuguée de ces deux champs crée des forces qui maintiennent le cristal en un perpétuel état d'instabilité conduisant à sa mise en rotation. Ainsi un couple est généré qui tire son origine d'une part du fait que le faisceau lumineux soit avec une polarisation elliptique donc doué d'un moment cinétique angulaire et d'autre part de la forme particulière de nos cristaux avec un grand et un petit côté! Cette brève explication établit la liaison avec le paragraphe suivant.

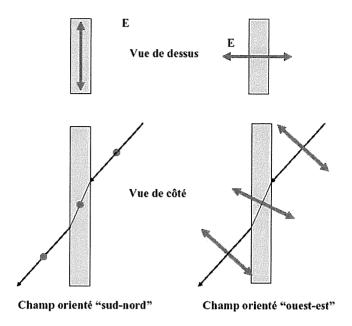


Fig. 5.23: Schéma montrant des rayons lumineux polarisés linéairement traversant un cristal de forme parallélipipédique. Le cristal est orienté de sorte que son axe long soit vertical.

#### 5.2.3 Rotation des cristaux biréfringents

Pour certaines conditions de l'expérience, il est possible de mettre les cristaux en rotation avec, de façon surprenante, des vitesses de rotation élevées. Nous décrivons dans les paragraphes suivants les observations relatives à ce phénomène, d'abord pour les cristaux de NBD-C8 de type I, puis pour ceux de type II.

# 5.2.4 Etude du comportement de la fréquence de rotation pour différents cristaux de type I

Sous des angles déterminés de la lame retardatrice à  $3\lambda/4$ , il est possible d'induire un couple de rotation qui peut mettre les cristaux en rotation autour de leur axe long. Le sens de cette rotation dépend aussi de l'angle choisi pour la lame cristalline.

Nous analysons d'abord le cas d'un cristal de type I soumis à un faisceau de puissance 30~mW mesurée à la sortie du laser. Les résultats sont montrés dans le tableau 5.6. Ces angles correspondent à des positions pour lesquelles la tache du laser s'observe avec la forme illustrée sur la figure 5.24.

Tab. 5.6: Récapitulatif des positions angulaires de la lame cristalline pour lesquelles la rotation d'un micro-cristal de type I a été observée. Le sens de cette rotation est aussi indiqué.

Angles (°)	0	70	80	90	160	170	180	250	260	270	340	350
Direction	(+)	(-)	(-)	(-)	(+)	(+)	(+)	(-)	(-)	(-)	(+)	(+)
Fréquence $(Hz)$	201	217	240	151	198	249	220	193	250	185	160	237

<sup>(+)</sup> dans le sens des aiguilles d'une montre.

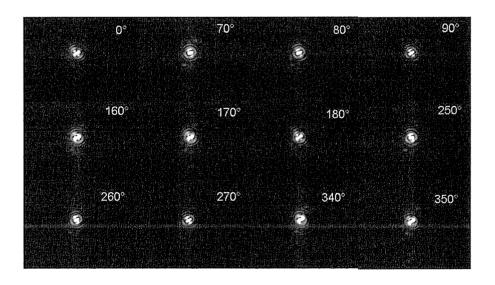


Fig. 5.24: Images de la tache laser pour différentes orientations de la lame cristalline  $3\lambda/4$  aux angles pour lesquels nous avons vu la rotation des micro-cristaux.

<sup>(-)</sup> dans le sens contraire des aiguilles d'une montre.

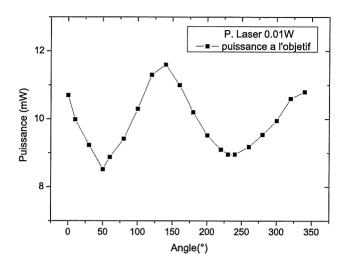


Fig. 5.25: Fluctuations de la puissance mesurée pour différentes orientations de la lame retardatrice.

Les fréquences de rotation pour les différentes positions de la lame oscillent entre 150 et 250 Hz. Elles ne se maintiennent pas parfaitement constantes parce que le fait de tourner la lame cristalline introduit une variation dans la puissance qui arrive au piège, comme nous le montrons sur la figure 5.25.

Nous attribuons ces évolutions de la puissance lorsqu'on tourne la lame cristalline à la présence de la lame dichroïque qui, recouverte de couches diélectriques, n'est pas neutre du point de vue de la polarisation et dont les effets se combinent avec ceux de la lame. Pour les mesures comme celles reportées sur la figure 5.27, on a tenu compte de ces fluctuations et les valeurs de puissance ont été corrigées en conséquence.

Les intervalles angulaires sur lesquels tournent les cristaux, un total de 8 cristaux de type I ainsi analysés, sont détaillés sur l'histogramme de la figure 5.26. Il existe des directions privilégiées pour lesquelles tous les cristaux étudiés ont été mis en rotation. Ces positions particulières de la lame cristalline sont : 80°, 170°, 260° et 350°, ce qui correspond à une différence angulaire constante de 90°.

C'est un résultat conforme à ce que l'on pouvait normalement attendre et qui montre que la lame cristalline que nous avons utilisée est effectivement une lame  $\lambda/4$  pour un rayonnement à  $\lambda = 1,064 \ \mu m$  (en fait, plus précisément une lame  $3\lambda/4$ , c'est-à-dire que son

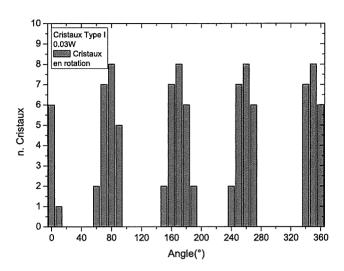


Fig. 5.26: Histogramme des angles de la lame cristalline  $3\lambda/4$  pour lesquels on observe la rotation des cristaux. Le comportement de 8 micro-cristaux de type I a ainsi été étudié.

épaisseur est égale à  $e=3\lambda/4(n_e-n_o)=91,3~\mu m$  où  $n_e-n_o=0,00874$  est la biréfringence du quartz à 1,064  $\mu m$ ). En effet, pour une polarisation linéaire à l'entrée de la lame, on obtient une polarisation circulaire en sortie pour une rotation de 45 degrés, puis on revient à une polarisation linéaire après 45 degrés supplémentaires et à nouveau à une polarisation circulaire en tournant la lame d'encore 45 degrés, ce qui correspond bien au total aux 90 degrés expérimentalement rapportés pour les orientations angulaires de la lame auxquelles on induit la rotation des micro-cristaux. Ce résultat est important parce qu'il établit de façon certaine que les cristaux ne tournent seulement qu'en présence d'une lumière dotée d'une polarisation circulaire, c'est-à-dire possédant un moment angulaire susceptible d'être transféré au micro-cristal. Une polarisation linéaire oriente seulement le micro-cristal mais ne peut induire de rotation. Notons qu'il n'y a pas qu'une seule valeur d'angle de la lame pour lequel les cristaux tournent mais toute une plage autour de chacune des orientations que nous avons mises en évidence puisque il suffit d'une polarisation elliptique pour induire la rotation, celle-ci devenant seulement plus efficace et rapide en polarisation parfaitement circulaire.

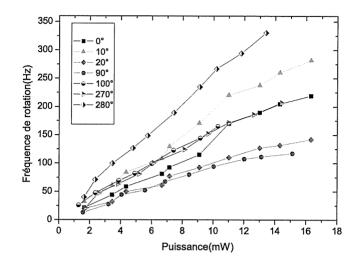
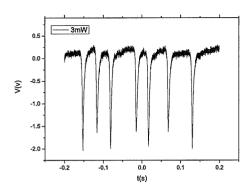


Fig. 5.27: Comportement de la fréquence de rotation avec la puissance pour différents angles de la lame retardatrice. Pour ces mesures, les variations de puissance dues à la rotation de la lame reportées sur la figure 5.25 ont été prises en compte.

## 5.2.4.1 Influence de l'état de polarisation sur la rotation

Voyons maintenant l'influence de la polarisation du faisceau sur le comportement de la fréquence de rotation à mesure que l'on augmente la puissance. Nous analysons la mise en rotation d'un cristal de type I pour différents angles de la lame cristalline et pour des puissances variant entre 1 et 16 mW mesurées à la sortie de l'objectif. La figure 5.27 montre comme résultat une variation considérable dans la pente des courbes de rotation selon l'angle de la lame retardatrice à  $3\lambda/4$ . On a obtenu comme positions favorables à la rotation les angles  $0^{\circ}$ ,  $10^{\circ}$ ,  $20^{\circ}$ ,  $90^{\circ}$ ,  $100^{\circ}$ ,  $270^{\circ}$  et  $280^{\circ}$ .

La position où nous avons atteint les fréquences de rotation les plus hautes correspondent à un angle de la lame retardatrice égal à 280°. Normalement, la meilleure situation qui assure la rotation des cristaux est celle où la lumière incidente est polarisée circulairement. Comme nous l'avons précédemment indiqué, toutes les orientations de la lame qui génèrent une polarisation circulaire ne sont pas parfaitement équivalentes derrière l'objectif à cause de la présence de la lame dichroïque. Fortuitement, nous constatons expérimentalement qu'avec notre montage, c'est pour un angle de 280° que l'on obtient la meilleure performance.



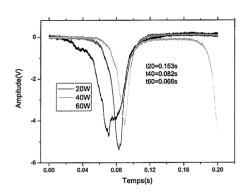
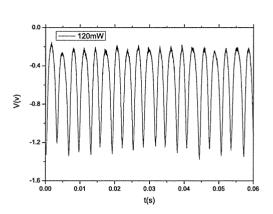


Fig. 5.28: Signal de rotation d'un cristal à faible puissance. On observe sur la courbe à gauche des temps inégaux entre les pics de signal qui démontrent le caractère saccadé de la rotation avec des durées variables de blocage du micro-cristal dans une orientation donnée avant son basculement dans une autre orientation. Chaque pic correspond au basculement sur un demitour du microcristal. Comme visualisé sur la figure de droite, la largeur des pics que l'on associe au temps de basculement dépend de la puissance.

# 5.2.4.2 Dépendance de la vitesse de rotation de micro-cristaux de type I avec la puissance

La dépendance de la fréquence de rotation des cristaux avec la puissance a été étudiée en utilisant les deux montages expérimentaux que nous avons construits. Dans nos observations expérimentales, nous avons noté que lorsqu'on travaille à faible puissance, le cristal ne tourne pas de façon continue, mais qu'il effectue brusquement d'abord un demitour, se maintient un court temps dans cette position d'équilibre instable, puis à nouveau brusquement, effectue le deuxième demi-tour. Ceci peut s'apprécier sur les signaux qui représentent la rotation du cristal à faible puissance comme illustré sur la figure 5.28.

La figure 5.29 montre le signal associé à la rotation des cristaux tel que délivré par le détecteur de position installé sur notre montage et observé sur l'écran de l'oscilloscope. Comme on le notera, il ne correspond pas à une sinusoïde pure, mais de sa périodicité, il est facile d'extraire la valeur de la fréquence de rotation par une transformée de Fourier rapide comme montrée dans le second graphe de la figure. Compte tenu de la forme des micro-cristaux et de leur orientation dans le faisceau laser, il faut faire attention au fait que le signal correspondant à la lumière diffusée détectée par le détecteur de position ne distingue pas, à cause d'une évidente raison de symétrie, la "gauche" de la "droite" du



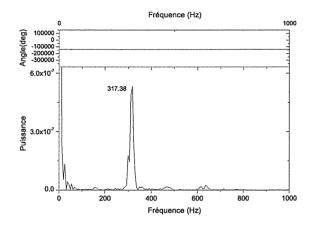
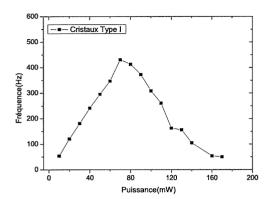


Fig. 5.29: Signal de rotation d'un cristal pour une puissance de 120 mW mesurée à la sortie du laser et sa transformée de Fourier.

cristal! Ceci signifie que le pic qui apparaît dans la transformée de Fourier est centré sur une valeur de fréquence double de celle la vitesse de rotation. En d'autres termes, chaque période du signal périodique enregistré correspond à un demi-tour du cristal. Ce point important a pu être confirmé visuellement. En effet, dans certaines situations de réglages, les cristaux ne tournaient pas de façon continue, mais avançaient par sauts discontinus d'un demi-tour à chaque fois.

Sur la figure 5.30, on montre la dépendance de la fréquence de rotation d'un cristal de type I au fur et à mesure qu'on augmente la puissance du laser. Initialement, la fréquence de rotation du cristal augmente linéairement avec la puissance jusqu'à atteindre un maximum à partir duquel elle commence à diminuer de manière irréversible, comme constaté dans l'expérience. Précisons que chaque point de la courbe représente une mesure de la fréquence du signal. Pour le cristal particulier étudié dans cette expérience, la fréquence maximale mesurée vaut  $431\ Hz$  et elle est atteinte pour  $70\ mW$  de puissance en sortie du laser. Cette expérience a été maintes fois effectuée avec différents cristaux, et dans tous les cas on a obtenu des résultats semblables, en variant seulement les fréquences de rotation maximales qui sont possibles, différences qui sont en rapport avec les dimensions des cristaux. Dans tous les cas, indépendamment du cristal, la valeur maximale de la fréquence de rotation a été atteinte pour approximativement la même valeur de puissance. Le fait le plus troublant demeure celui concernant le caractère irréversible de cette évolution. En effet, bien que la puissance incidente continue d'augmenter, après avoir passé son



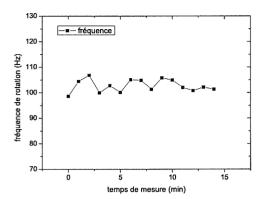


Fig. 5.30: A gauche, comportement de la vitesse de rotation avec l'augmentation de la puissance incidente. A droite, stabilité de la fréquence de rotation pendant le temps de mesure.

maximum, la vitesse de rotation du micro-cristal diminue et son caractère irréversible se manifeste par le fait qu'une diminution de la puissance n'induit pas une re-augmentation de la vitesse de rotation. Qui plus est, en continuant d'augmenter la puissance, on aboutit à une situation où le cristal est à nouveau bloqué dans une orientation figée!

Dans ces expériences où nous avons observé toujours le même comportement répété, nous avons noté des fréquences associées à la rotation des micro-cristaux remarquablement élevées, jusqu'à de l'ordre de 1 kHz, ce qui correspond à une vitesse de rotation du micro-cristal pouvant atteindre 500 tours par seconde! Ces différences dans les vitesses maximales de rotation sont fondamentalement reliées aux dimensions des cristaux comme nous le rapportons au paragraphe suivant.

#### Stabilité de la rotation

Pour être sûrs que les effets observés de diminution de la fréquence de rotation après qu'elle ait atteint sa valeur maximale ne sont pas associés à un problème de stabilité dans la méthode de mesure, nous avons mesuré la fréquence de rotation pendant 15 minutes pour une valeur de puissance fixée à 80~mW. Le résultat montré sur la figure 5.30 révèle une stabilité acceptable pendant le temps de mesure. Il peut donc être considéré que pour le temps de mesure habituel d'une expérience comme celle-ci, de l'ordre de 5 minutes approximativement, le système est maintenu stable.

Cependant, cela n'est pas toujours observé et, probablement à cause de perturba-

tions locales induites dans le milieu fluide (turbulences, objet sub-microscopique invisible passant au voisinage), la rotation peut être fortement perturbée et le micro-cristal en rotation peut alors être brutalement éjecté du piège.

### 5.2.4.3 Influence des dimensions des cristaux sur la vitesse de rotation

La figure 5.31 montre le comportement de la fréquence de rotation avec l'augmentation de la puissance pour 3 cristaux de type I ayant des longueurs différentes de leur dimension transversale. Ces dimensions ont été estimées approximativemen au microscope optique à 1, 1,5 et 2  $\mu m$  respectivement. On constate que pour tous les cas étudiés, la valeur maximale de la fréquence est atteinte pour quasiment la même valeur de la puissance incidente. On montre aussi la diminution de la fréquence maximale de rotation atteinte diminue avec l'augmentation de la taille du cristal, ce pourquoi il peut être dit qu'au fur et à mesure qu'augmente la taille du cristal la fréquence de rotation diminue, comme on pouvait s'y attendre, sur la base du simple argument de l'augmentation du moment d'inertie du micro-cristal.

### 5.2.4.4 Analyse de la diminution de la fréquence de rotation des cristaux

La courbe de la figure 5.32 montre le résultat de la rotation pour un cristal de type I, mesuré avec notre second arrangement expérimental. La valeur maximale de la fréquence de rotation est approximativement de  $180\ Hz$  et est atteinte pour une puissance de  $30\ mW$  mesurée à la sortie de l'objectif. Pour observer l'évolution du signal associé à la rotation du cristal tel qu'enregistré sur la figure 5.33, aux fins d'illustration, nous sélectionnons trois points de la courbe expérimentale de la figure 5.32.

Nous avons sélectionné des points qui se trouvent au début de la courbe ascendante, au maximum et en fin de la courbe descendante pour des puissances mesurées à la sortie de l'objectif de 3,01~mW, 28,3~mW et 43,9~mW respectivement. On peut noter que l'amplitude du signal enregistré par le détecteur diminue avec l'augmentation de la fréquence de rotation.

Sur la figure, on voit aussi qu'à mesure qu'augmente la puissance et qu'on approche de la fréquence maximale de rotation du cristal, il apparaît un autre pic de fréquence sur le spectre de la transformée de Fourier, et ce pic change de position et d'amplitude au fur et à mesure que la puissance augmente. L'amplitude de ce pic devient proche

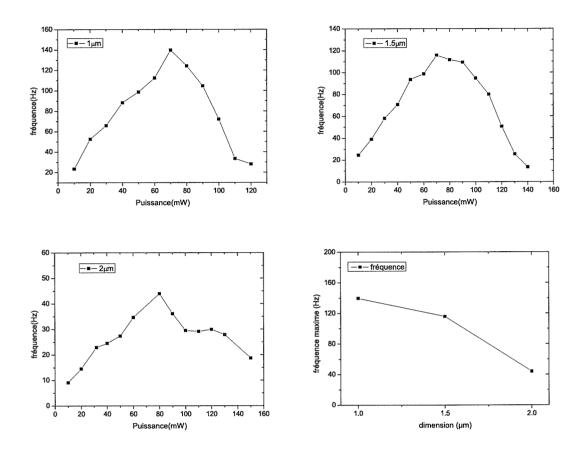


Fig. 5.31: Comportement de la fréquence de rotation pour des cristaux de différentes dimensions de 1  $\mu m$ , 1,5  $\mu m$  et 2  $\mu m$ .

de celle du pic principal lorsqu'on arrive vers le bas de la courbe, là où le cristal semble pratiquement arrêté. Parallèlement, le pic principal commence à s'élargir, à s'étaler autour de sa fréquence centrale et à diminuer en amplitude.

Les positions des pics dans le spectre de fréquence sont en relation d'être exactement ou seulement approximativement telles que l'une soit le double de l'autre, ce qui suggère qu'il s'agisse de fréquences harmoniques. L'apparition de ces fréquences harmoniques reflèteraient soit l'apparition d'irrégularités dans la rotation du micro-cristal, soit des imperfections dans la morphologie du micro-cristal piégé. Ces deux causes se traduisant par un signal s'éloignant davantage d'un signal de type sinusoïdal.

Il existe dans la bibliographie que nous avons consultée, un travail rapportant un résultat similaire au nôtre et dans lequel les auteurs attribuent la relation de fréquence

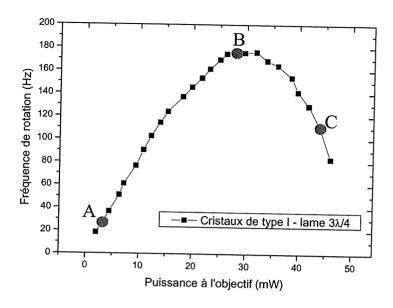


Fig. 5.32: Variation de la fréquence de rotation avec l'augmentation monotone de la puissance pour un cristal de type I.

entre les deux pics observés à la symétrie de l'objet capturé [85]. Ils ont considéré que si l'objet possède des protubérances dans des positions approximativement opposées l'une de l'autre, ceci provoque l'apparition d'un pic à une fréquence double de la fréquence de rotation. Bien que cette explication soit tout à fait raisonnable et plausible dans le cas des systèmes étudiés par les auteurs, systèmes qui ne tournaient qu'à des vitesses extrêmement faibles de l'ordre de 1 tour/sec, il nous semble cependant que dans notre cas où nous observons des vitesses de rotation beaucoup plus élevées, il suffit d'évoquer des irrégularités dans le mouvement de rotation des micro-cristaux pour voir apparaître des pics harmoniques.

Toutefois, si nous observons de façon détaillée les transformées de Fourier obtenues pour différents signaux enregistrés, il est possible de trouver d'autres pics avec des amplitudes bien plus petites mais qui conservent une relation entière entre leurs fréquences telle que nf où f est la fréquence du pic fondamental et où n varie entre 1 et 4. Indubitablement, ces pics représentent des fréquences harmoniques de la fréquence fondamentale associée à la rotation du micro-cristal. Sur la figure 5.34, on montre l'évolution avec la puissance des quatre pics révélés par la transformée de Fourier où le pic numéro 2 est celui de plus grande amplitude et où le pic numéro 1 est celui dont le comportement apparaît

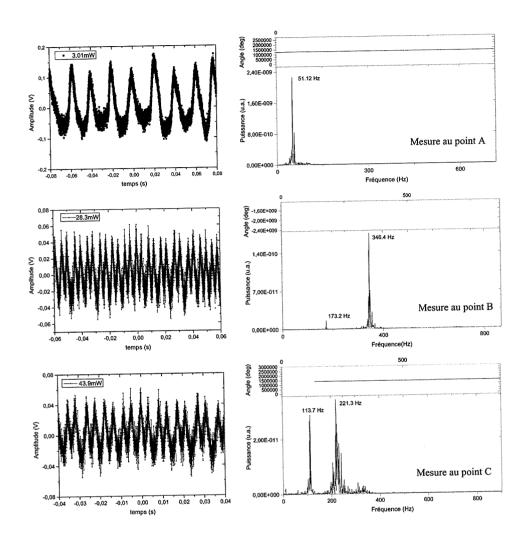


Fig. 5.33: Signal de rotation et sa transformée de Fourier pour différents points de la courbe de la fréquence de rotation en fonction de la puissance.

aussi sur la figure 5.32.

Il n'est pas seulement intéressant d'analyser la valeur de la fréquence pour lesquelles on observe un pic dans la transformée de Fourier du signal, mais aussi de considérer les valeurs des amplitudes des pics, comme observés dans la figure 5.35. Dans tous les cas, l'amplitude diminue sauf dans quelques cas où apparait une tendance à l'augmentation vers la fin de la courbe.

La différence entre les amplitudes des pics principaux, les pics 1 et 2 qui apparaissent dans la figure 5.36, augmente avec l'accroissement de la puissance. Ceci se traduit en ce que l'amplitude du pic 2, le pic principal, va en diminuant à mesure que la puissance augmente

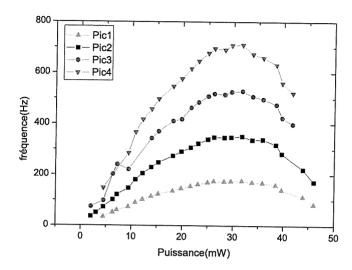


Fig. 5.34: Comportement des quatre pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de la puissance.

tandis que celle du pic 1 commence à croître à partir de  $30\ mW$  approximativement, c'est-à-dire au moment où la vitesse de rotation du cristal est en train de diminuer. Ceci peut suggérer un phénomène de transfert d'énergie entre des processus associés à l'un ou l'autre pic de fréquence. Nous pouvons illustrer ce que nous venons d'exposer en montrant l'évolution des deux pics principaux avec l'augmentation de la puissance comme sur la figure 5.37

On observe qu'à mesure qu'augmente la puissance, le pic principal se déplace vers des fréquences plus élevées et que son amplitude tend à diminuer. Dans la dernière partie de la courbe, on relève le contraire, à savoir qu'à mesure que continue d'augmenter la puissance, la fréquence du pic principal commence à diminuer, mais que son amplitude décroît également. Dans ce cas, on observe un transfert des pics intenses vers les plus faibles et on peut apprécier comment l'amplitude des petits pics va en augmentant avec la diminution de la fréquence.

Une explication possible à ce comportement pourrait être que la diminution de la fréquence à partir d'une certaine valeur soit associée à l'apparition de mouvements autour d'autres degrés de liberté, comme si le micro-cristal transférait son mouvement de rotation autour de son axe long principal en une rotation de type précession à la manière d'une

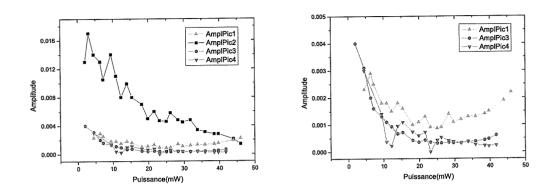


Fig. 5.35: Amplitude des pics de la transformée de Fourier.

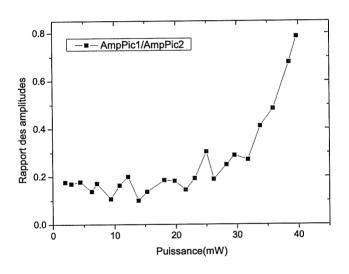


Fig. 5.36: Rapport des amplitudes des pics 1 et 2 de la transformée de Fourier.

toupie. A partir d'une telle hypothèse, nous avons construit un modèle préliminaire simple pour évaluer ce qui se passe lorsque le micro-objet commence à tourner autour d'un autre axe distinct de son axe z long.

Nous développons ci-après un modèle mathématique susceptible de rendre compte de l'allure des courbes obtenues pour l'évolution de la vitesse de rotation avec la puissance incidente.

Déterminons tout d'abord les moments d'inertie d'un cristal de forme parallélépipédi-

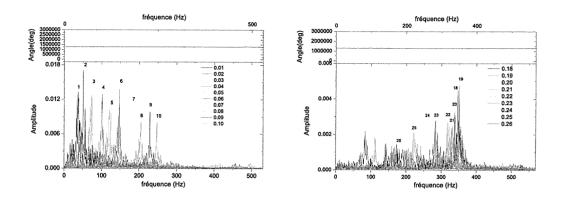


Fig. 5.37: Evolution des pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de puissance, indiquée en Watt sur la figure pour chacune des courbes.

que, à partir des dimensions typiques de l'un d'eux telles que mesurées sur la figure 4.41.

Soient donc les dimensions  $a=3.5~\mu m,\,b=0.115~\mu m$  et  $c=8.3~\mu m.$  Le volume du cristal sera  $V=3.341~\mu m^3.$ 

Supposant une densité  $\rho=1$   $g/cm^3$ , la masse sera  $m=3,341.10^{-12}$  g et les moments d'inertie vaudront :

$$I_x = \frac{m}{12}(b^2 + c^2)$$
  $I_y = \frac{m}{12}(a^2 + c^2)$   $I_z = \frac{m}{12}(a^2 + b^2)$  (5.1)

$$I_x = 1,918.10^{-11}$$
  $I_y = 2,259.10^{-11}$   $I_z = 3,414.10^{-12}$  (5.2)

Considérant que le cristal a donc trois fréquences de rotation caractéristiques  $\omega_x$ ,  $\omega_y$  et  $\omega_z$  autour des axes de rotation selon les directions x, y et z du cristal respectivement, l'énergie cinétique et le moment angulaire de rotation seront donnés par :

$$E_x = (\frac{1}{2})I_x\omega_x^2$$
  $E_y = (\frac{1}{2})I_y\omega_y^2$   $E_z = (\frac{1}{2})I_z\omega_z^2$  (5.3)

$$L_x = I_x \omega_x \qquad L_y = I_y \omega_y \qquad L_z = I_z \omega_z \tag{5.4}$$

Prenant en compte les lois de conservation de l'énergie et du moment angulaire, on en déduit :

$$(I_x \omega_x)^2 + (I_y \omega_y)^2 + (I_z \omega_z)^2 - L^2 = 0 \qquad E_x + E_y + E_z - E = 0$$
 (5.5)

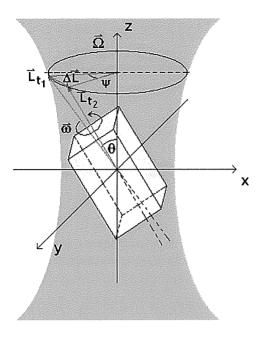


Fig. 5.38: Schéma montrant la possibilité de mouvements combinés de rotation et de précession du cristal dans le piège optique.

où E et L représentent respectivement l'énergie totale et le moment angulaire total du système. Considérons que l'énergie E est proportionnelle à la puissance incidente et écrivons donc que  $E=\alpha P$ . Le moment angulaire total L en fonction de paramètres réduits s'écrit alors :

$$L = \frac{2E}{\omega_0} \sqrt{(\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + \sigma_z^2)} \tag{5.6}$$

où  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$  sont les moments angulaires réduits, tels que  $\sigma_x = \frac{L_x}{L}$ ,  $\sigma_y = \frac{L_y}{L}$ ,  $\sigma_z = \frac{L_z}{L}$  et  $\omega_o = 2\pi\nu_0$  est la fréquence de la lumière.

Pour faire un lien entre ce modèle mathématique et la réalité physique, il convient de considérer la possibilité que le cristal qui n'est pas lié à un axe de rotation matériel puisse réaliser un mouvement de précession autour d'un axe vertical défini par la direction du faisceau laser en plus de son mouvement de rotation rapide autour de son axe long z (Figure 5.38). Ceci pourrait éventuellement expliquer la diminution de la fréquence de rotation par un transfert progressif de l'énergie de rotation autour de z en faveur de la précession plus lente.

Pour analyser cette situation, nous considérons comme précédemment les expressions de l'énergie 5.3 et du moment angulaire 5.4 et les lois de conservation 5.5 pour ces deux types de mouvements, sachant que le mouvement de précession est plus compliqué à décrire. Nous avons alors :

$$E_1 = \frac{1}{2}I_1\omega^2$$
  $E_2 = \frac{1}{2}I_2\Omega^2$   $(I_1w)^2 + (I_2\Omega)^2 - L^2 = 0$  (5.7)

où  $I_1$  et  $I_2$  sont les moments d'inertie pour une rotation autour d'un axe de symétrie du cristal et pour une précession autour de l'axe du faisceau respectivement, L étant le moment angulaire total du système. Les fréquences de rotation et de précession sont notées par  $\omega$  et  $\Omega$  respectivement.

Considérons de plus qu'une partie de l'énergie soit transférée au milieu environnant par un mécanisme de frottement visqueux représenté par le terme  $E_R$ . Ainsi, la conservation de l'énergie s'écrit :

$$E_1 + E_2 + E_R - E = 0 (5.8)$$

où E est l'énergie totale du système. Nous pouvons considérer que les moments d'inertie sont liés de sorte que  $I_1=\eta I_2$  où  $\eta$  est une constante de proportionnalité. Les fréquences  $\omega$  et  $\Omega$  varient en fonction du moment angulaire total selon  $\omega=\alpha L$  et  $\Omega=\beta L$ .

Le moment angulaire total du système conserve aussi une relation avec l'énergie totale du système, elle-même liée à la puissance lumineuse incidente. Dans une approche simplifiée, nous pouvons considérer que  $L=\mu E$ . Les paramètres  $\mu$ ,  $\alpha$  et  $\beta$  peuvent être considérés comme des fonctions de la puissance ou de l'énergie totale du système.

En nous basant sur ces considérations, il est possible d'obtenir le comportement des fréquences de rotation et de précession en fonction de la puissance incidente et de vérifier si ce modèle peut rendre compte de nos observations expérimentales.

Si nous introduisons l'hypothèse selon laquelle  $\alpha$  est une fonction de la puissance et qu'elle nous donne le comportement du transfert du moment angulaire du système, nous pouvons chercher l'allure de la fonction  $\alpha$  pour laquelle le modèle s'accorde le mieux avec les résultats issus de l'expérience. En suivant ce raisonnement, sur les points expérimentaux de la figure 5.32, nous avons ajusté les valeurs de  $\alpha$  correspondantes, comme montré sur le graphe de gauche de la figure 5.39.

Les points en noir du graphe représentent les valeurs de  $\alpha$  pour les points expérimen-

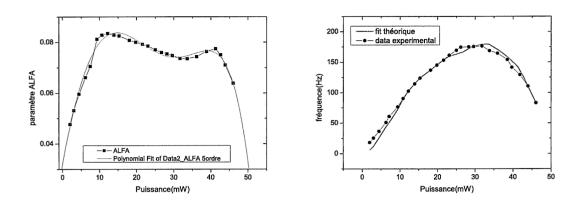


Fig. 5.39: Ajustement du modèle de précession sur les données expérimentales.

taux et la courbe continue est la fonction d'ajustement calculée en utilisant un polynôme du cinquième degré. Ainsi, en faisant l'hypothèse d'une variabilité de  $\alpha$  avec la puissance, il est possible d'ajuster les fréquences de rotation déduites du modèle avec la courbe expérimentale comme montré sur le graphe de gauche de la figure 5.39.

Ces graphes nous disent que, s'il existe une fonction  $\alpha$  représentant la fraction du moment angulaire total utilisée par le mouvement de rotation autour de l'axe z du cristal et dépendant de la puissance, alors nous pouvons rendre compte d'un comportement tel que celui observé. Cependant, il est difficile de justifier pourquoi  $\alpha$  devrait se comporter ainsi.

Toujours dans la recherche d'une explication du comportement observé en relation avec le fait que la diminution de la vitese de rotation des micro-cristaux à partir d'un certain niveau de puissance incidente soit due à l'activation d'un mouvement de précession, nous pouvons écrire l'équation dynamique du mouvement du cristal qui tourne et précesse dans le piège en présence d'un couple de frottement visqueux dû au fluide environnant. Cette équation s'écrit :

$$\tau_{total} = \tau_{rotation} + \tau_{friction} + \tau_{pr\'{e}cession} \tag{5.9}$$

Le couple de rotation est donné par  $I\frac{d\omega}{dt}$  où I est le moment d'inertie du cristal autour de son axe long de rotation et  $\frac{d\omega}{dt}$  est l'accélération angulaire. D'un autre côté, le couple de frottement s'écrit  $\gamma\omega$  où  $\gamma$  est le facteur d'amortissement dont l'expression

dépend de la forme de l'objet et est donnée par la loi de Stokes. Il manque d'exprimer le couple associé à la précession que l'on peut facilement obtenir avec l'aide du schéma de la figure 5.38.

Soit  $\Omega = d\psi/dt$  la fréquence de précession. Pour un  $\psi$  petit, nous pouvons considérer que  $d\psi = \frac{dL}{L\sin\theta}$ , où L est le moment angulaire du système. Comme de plus le couple est donné par  $\tau = \frac{dL}{dt}$ , la fréquence de précession s'exprimera comme :

$$\Omega = \frac{\tau_{pr\'{e}cession}}{L\sin\theta} = \frac{\tau_{pr\'{e}cession}}{I\omega\sin\theta}$$
 (5.10)

En substituant ces expressions dans l'équation 5.9, l'équation du mouvement pour notre système sera donnée par :

$$\tau_{total} = I \frac{d\omega}{dt} - \gamma\omega - \Omega I \sin \theta\omega = I \frac{d\omega}{dt} - (\gamma + \Omega I \sin \theta)\omega$$
 (5.11)

Nous sommes en présence d'une équation différentielle du premier ordre. Si nous considérons que le couple total est proportionnel à la puissance P fournie au système, la solution de l'équation s'écrit :

$$\omega(t) = \frac{P}{C_2} (\exp^{Ct} - 1) \tag{5.12}$$

où les coefficients C et  $C_2$  sont donnés par :

$$C = \frac{C_2}{C_1} \qquad C_1 = I \qquad C_2 = \gamma + \Omega I \sin \theta \tag{5.13}$$

Considérant le cas stationnaire, si les coefficients qui apparaissent dans l'équation 5.11 sont indépendants de la puissance, le résultat sera un comportement linéaire de  $\omega$  avec la puissance, ce que nous observons effectivement dans la première partie des courbes expérimentales. Dans cette hypothèse, l'équation du mouvement ne saurait expliquer la diminution de la fréquence de rotation que l'on observe à partir d'une certaine valeur de la puissance. Pour en rendre compte, on peut considéré comme très raisonnable de supposer que le paramètre  $C_2$  dépende de la puissance. En effet, ce paramètre est lié à la fréquence de précession  $\Omega$  et à l'angle  $\theta$  dont on imagine bien qu'ils puissent avoir quelque relation avec la puissance incidente. Supposons donc que  $C_2=K(1+\epsilon P)$  où K est une constante et  $\epsilon$  un facteur de proportionnalité petit, tel que  $\epsilon P$  soit bien inférieur à 1. Dans ce cas,

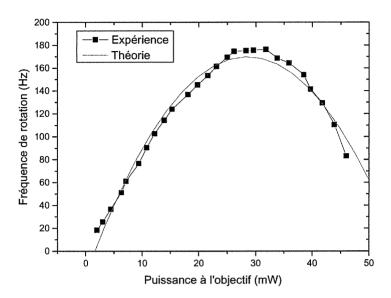


Fig. 5.40: Ajustement de la courbe expérimentale par une fonction parabolique à courbure négative de la forme  $A + B.P(1-\epsilon P)$  avec A=-20,5, B=13,3 et  $\epsilon=0,017$ .

on a alors:

$$\omega(t) = \frac{P}{K(1 + \epsilon P)} \sim \frac{P}{K}(1 - \epsilon P) \tag{5.14}$$

On fait ainsi apparaître une fonction parabolique avec une courbure négative que l'on peut ajuster avec la courbe expérimentale comme montré sur la figure 5.40. Si ce modèle rend compte de façon simple de l'allure générale des courbes expérimentales, il ne fournit pas la clé du pourquoi de la dépendance avec la puissance.

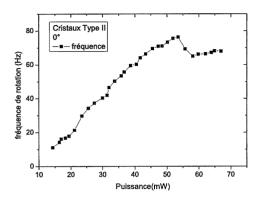
Une autre hypothèse possible à examiner est le fait que dans son mouvement de rotation, le micro-cristal puisse s'écarter de sa position d'équilibre par rapport au foyer et de l'axe du faisceau pour se retrouver dans une zone où le gradient d'intensité est moins intense, d'où un couple plus faible et une diminution de la vitesse de rotation. La dépendance de la vitesse de rotation avec la position de l'objet par rapport au foyer a été décrite dans la littérature ([91, 198]) et il a été observé qu'à partir d'une certaine distance, la vitesse de rotation commence à diminuer. Cependant, dans notre cas, si le cristal se déplaçait ainsi de sa position d'équilibre par rapport au foyer alors qu'il a déjà atteint une vitesse de rotation élevée et si dans sa nouvelle position, sa vitesse tendait à diminuer, alors cette diminution aurait pour conséquence que le cristal aussitôt tendrait à revenir à sa position d'équilibre originale. Ainsi, on s'attendrait à une re-augmentation

de la vitesse, situation qui conduirait à ce que le cristal soit soumis à seulement des fluctuations de vitesse qui ne pourraient permettre d'expliquer la diminution continue de la vitesse de rotation telle qu'observée au delà d'une certaine puissance.

Des effets hydrodynamiques pourraient aussi influer étant donné le fait que le cristal se trouve au sein d'un fluide et qu'atteignant des vitesses de rotation tout à fait élevées, il peut par son mouvemnt induire des tourbillons locaux. Ces frottements avec le fluide visqueux peuvent être cause d'une élévation locale de température de nature à modifier les propriétés de viscosité locale du milieu. On peut ainsi penser qu'une augmentation de la température puisse conduire à une diminution de la viscosité, situation qui pourrait être un facteur de nature à modifier les conditions d'équilibre du cristal dans le piège et donc sa position.

Enfin, ces vitesses de rotation élevées dans un milieu visqueux peuvent être aussi la cause d'une usure du cristal conduisant à ce que ses arêtes ou ses coins s'émoussent, diminuant ainsi l'effet des forces induites par la lumière, d'où la diminution de la vitesse de rotation. De toutes les variantes proposées pour expliquer la diminution de la vitesse de rotation, cette dernière permettrait aussi de rendre compte du fait que cette diminution de la vitesse soit irréversible, c'est à dire du fait que nous n'ayons jamais observé une re-augmentation de la vitesse en diminuant la puissance après avoir passé le seuil du maximum de vitesse.

Cette question de l'irréversibilité est bien le point le plus intriguant. Elle appelle à une analogie avec le comportement d'un agitateur magnétique utilisé pour homogénéiser une solution. Cet agitateur est constitué d'un barreau aimanté mis en rotation par un aimant tournant placé au-dessous de la plaque sur laquelle repose le récipient contenant le liquide à agiter. Si on augmente progressivement la vitesse de rotation de l'aimant, l'agitateur magnétique suit parfaitement le mouvement au début mais il peut arriver qu'au delà d'une certaine vitesse, l'agitateur ne puisse plus suivre et il semble alors bloqué! Le champ magnétique tourne bien trop vite sous lui pour qu'il puisse suivre et il ne manifeste plus que des soubresauts. Cette évolution est irréversible puisqu'il faut le plus souvent arrêter complètement l'appareil et reprendre tout depuis le début. La transposition de cette situation au cas d'un cristal soumis à l'action d'un couple de rotation induit par la lumière n'est pas immédiate mais l'analogie que cet exemple suggère mérite sûrement que l'on s'y intéresse plus en profondeur.



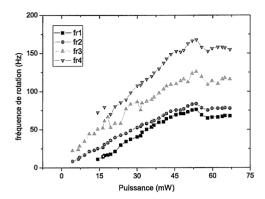


Fig. 5.41: A gauche, comportement de la fréquence de rotation avec l'augmentation de la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour un cristal de type II. A droite, comportement des quatre pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de la puissance

# 5.2.5 Etude du comportement de la fréquence de rotation pour différents cristaux de type II

Pour les cristaux de type II, pour le même domaine de puissances dans lequel on a étudié les cristaux de type I, nous n'observons pas clairement que l'on atteigne un maximum dans la fréquence de rotation, toutefois il semble que la tendance est de l'atteindre à des puissances plus grandes, puisqu'on note un effet de saturation et de stabilisation des valeurs de la fréquence de rotation dans le domaine mesuré. En fait, nous ne pouvions pas augmenter beaucoup plus au delà de la valeur maximale rapportée. En effet, pour aller au delà d'une puissance de 70~mW mesurée à la sortie de l'objectif avec le montage à deux pièges, il faut pousser le laser à fibre dopée Ytterbium presqu'au maximum de sa capacité.

Avec ces cristaux, on identifie également plusieurs pics dans le spectre obtenu par transformation de Fourier, comme illustré sur la figure 5.41. Ces pics conservent aussi une relation entre leurs fréquences approximativement du type nf comme dans le cas antérieur.

La figure 5.42 illustre le comportement des amplitudes de chaque pic. Dans ce cristal, à la différence de ce que nous avions noté pour les cristaux de type I, on observe que les amplitudes des pics augmentent.

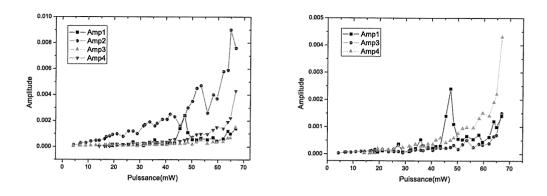


Fig. 5.42: Amplitude des pics de la transformée de Fourier.

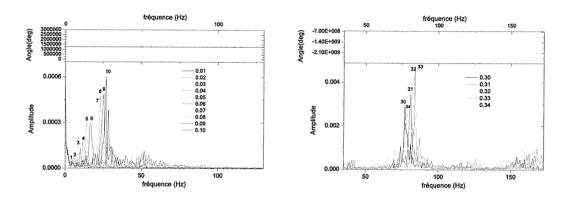


Fig. 5.43: Evolution des pics de la transformée de Fourier avec l'augmentation de la puissance.

L'évolution des pics de la transformée de Fourier est rapportée sur la figure 5.43. Pour ces cristaux, à mesure que le pic se déplace vers des fréquences plus élevées, leur amplitude augmente jusqu'à une valeur maximale et puis diminue en fréquence et en amplitude.

Une mesure similaire du comportement de la fréquence de rotation en fonction de la puissance a été aussi réalisée sur des cristaux de type II en forme de croix, cristaux qui se forment occasionnellement et apparaissent ensemble avec les autres cristaux. Les résultats sont présentés sur la figure 5.44. Les mesures ont été faites avec la lame  $3\lambda/4$  dans la position  $0^0$  comme dans le cas du cristal de type II de la figure 5.41. Il est nécessaire de tenir compte du fait que pour un cristal en forme de croix, le pic principal de fréquence

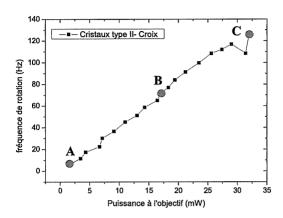


Fig. 5.44: Comportement de la fréquence de rotation avec la puissance mesurée à la sortie de l'objectif pour un cristal de type II en forme de croix.

qui apparaît dans la transformée de Fourier, celui de plus grande amplitude, correspond à quatre fois la valeur de la fréquence réelle de rotation du cristal. En effet, la symétrie du cristal en croix fait que l'intensité diffusée est à peu près la même pour chaque rotation du cristal de 90°. Dans les graphiques, nous avons donc pris soin de reporter la fréquence de rotation réelle, c'est-à-dire celle du pic principal de la transformée de Fourier divisée par 4. Si nous comparons les résultats obtenus pour les deux cristaux de type II, celui normal et celui en croix, nous observons que nous obtenons des fréquences de rotation plus grandes dans le cas du cristal en forme de croix, grosso modo par un facteur 2.

Pour observer l'évolution du signal associé à la rotation, nous avons sélectionné trois point sur la courbe expérimentale comme montré sur la figure 5.45. Sur la figure, de la même manière que dans le cas d'un cristal de type I (Figure 5.33), on observe comment à mesure que la puissance augmente vont apparaissant d'autres pics de la transformée de Fourier qui conservent une relation de la forme n fois la valeur de la fréquence du premier pic avec n variant de 1 jusqu'à 4. Ces pics sont attribués aux fréquences harmoniques de la fréquence fondamentale et témoignent du fait que la rotation du cristal est de moins en moins régulière.

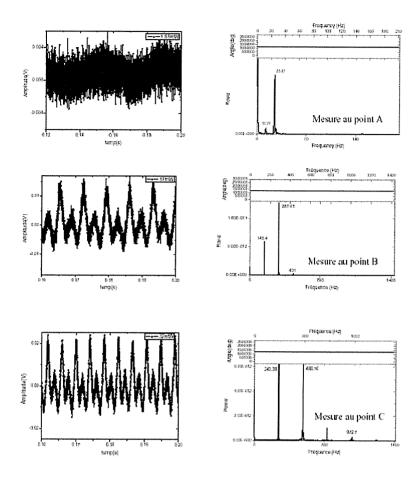
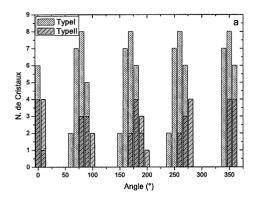


Fig. 5.45: Signal de rotation et sa transformée de Fourier pour différents points sélectionnés sur la courbe de la fréquence de rotation en fonction de la puissance pour un cristal de type II en forme de croix.

### 5.2.6 Comparaison des résultats obtenus pour les deux types de cristaux

Pour les cristaux de type II, nous avons effectué les mêmes expériences sur 8 cristaux pour déterminer les positions angulaires de la lame retardatrice pour lesquelles la rotation était observée. Pour ces cristaux, nous avons noté une plus grande dispersion des résultats et un plus grand nombre de positions pour lesquelles les cristaux tournent.

Dans les comparaisons effectuées entre les deux cristaux (Figures 5.46 a et b), on n'obtient donc pas les mêmes résultats. Dans un des cas (Figure 5.46 a), les angles de rotation coïncident approximativement, tandis que dans l'autre cas (Figure 5.46 b) non. Les intervalles des positions angulaires de la lame pour les deux types de cristaux sont rapportés dans le tableau 5.7.



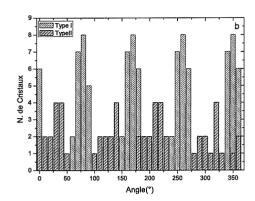


Fig. 5.46: Histogrammes comparés des positions des angles favorables à la rotation pour des cristaux de type I et II.

Comme nous l'avons déjà analysé, les cristaux de type I ne tournent pas dans les cas étudiés pour les angles compris entre 20 et 50, entre 110 et 140, entre 210 et 230, entre 290 et 330. Tous les cristaux étudiés ont été mis en rotation pour des angles de 80, 170, 260, 350, avec un intervalle constant entre eux de 90. Dans le cas des cristaux de type II, la dispersion quant aux angles de rotation est plus grande. En fait, on peut distinguer deux groupes de cristaux de type II. Pour un premier groupe (Figure 5.46 a), on trouve que les cristaux ne tournent pas pour des angles compris entre 20 et 70, entre 110 et 160, entre 210 et 250, entre 290 et 340. C'est un comportement tout à fait similaire à celui rapporté pour les cristaux de type I (Figure 5.26). Pour un second groupe de cristaux (Figure 5.46 b), les cristaux de type II ne tournent pas seulement dans les positions 70, 80, 250, 260. Il nous semble que cette particularité de comportement doit être associée à une morphologie ou à des dimensions particulières des micro-cristaux correspondants, mais malheureusement, nous n'avons pas d'indications plus précises sur ces points.

#### 5.2.7 Analyse et discussion des résultats

En forme de résumé, et en extrayant les résultats les plus significatifs, nous discutons et concluons sur les résultats et les observations que nous avons effectuées sur les microcristaux de NBD-C8.

Nous avons souligné que la structure cristaline des micro-cristaux n'était pas élucidée, cependant, grâce aux mesures optiques effectuées au microscope polarisant nous avons pu

Tab. 5.7: Angles et sens de rotation pour les deux types de cristaux étudiés. Notez les deux comportements différents que nous avons observés pour des cristaux de type II.

Echantillon	Angles (°)	Angles (°)	Angles (°)	Angles (°)
Cristal type I	60-90	150-190	240-270	340-10
Cristal type IIa	80-100	170-200	260-280	350-10
Cristal type IIb	100-140	180-230	280-330	350-50
Sens de rotation	(-)	(+)	(-)	(+)

<sup>(+)</sup> dans le sens des aiguilles d'une montre.

démontrer le caractère monocristallin des micro-cristaux, leur caractère biréfringent uniaxe et nous avançons des hypothèses sur leur structure cristalline probable. Sous contrôle d'un faisceau lumineux focalisé, nous avons rapporté en détail les particularités du comportement des micro-cristaux. A cause de leur forme parallélépipédique, ils s'orientent de sorte que leur axe long soit dans la direction axiale du faisceau de piégeage, pendant que l'orientation de leur axe court est contrôlée par la direction de la polarisation linéaire du faisceau et le cristal peut donc tourner si on fait tourner cette polarisation.

Les faits les plus remarquables concernent la rotation rapide des cristaux sous l'influence d'une polarisation circulaire ou seulement elliptique. Les cristaux se mettent spontanément en rotation avec des vitesses de rotation pouvant atteindre jusqu'à 500 tours par seconde. C'est la première fois qu'un tel résultat est rapporté pour des particules de la taille de nos cristaux. Des vitesses aussi élevées n'ont, à notre connaissance, été rapportées seulement pour des micro-cristaux de forme cubique, dont la taille n'excède pas le micromètre, piégées par une pince optique et mises en rotation non sous l'influence du champ lumineux mais sous celle d'un champ électrique tournant généré par un dispositif de quatre micro-électrodes [199]. Enfin, le résultat surprenant de notre travail est que nous avons observé que la vitesse de rotation des micro-cristaux croît lorsqu'on augmente la

<sup>(-)</sup> dans le sens contraire des aiguilles d'une montre.

puissance laser incidente, jusqu'à passage par un maximum, puis diminue. L'interprétation complète de cette évolution n'est pas claire et nous avons avancé plusieurs hypothèses, notamment en mettant en avant la possibilité de couplages et de transfert entre divers mouvements possibles des micro-cristaux, par exemple entre la rotation rapide autour de l'axe long et des rotations de précession et de nutation. Les points les plus difficiles à comprendre concernent le fait qu'en augmentant monotoniquement la puissance, la vitesse de rotation puisse, après passage par une valeur maximale, diminuer jusqu'à arrêt complet de la rotation, et que cette évolution ne soit pas réversible! L'analogie évoquée avec le comportement d'un barreau aimanté mis en rotation dans un fluide par un champ magnétique tournant et qui se bloque lorsque la vitesse de rotation du champ magnétique dépasse un certain seuil est intéressante mais son application au cas d'un micro-cristal dans un faisceau de lumière en polarisation circulaire n'est pas évidente, malgré les similitudes de comportement observées entre les deux systèmes.

### Chapitre 6

## Autres développements et perspectives

Dans ce chapitre, nous souhaitons évoquer quelques thèmes pouvant constituer l'objet de recherches futures. Chacun d'eux peut relever d'un véritable défi. Certains des axes présentés ici ont fait l'objet de tentatives menées au cours de mon travail de thèse comme les pinces optiques en régime femtoseconde ou le contrôle de moteurs biomoléculaires. D'autres sont seulement à l'état de projets comme la manipulation en 3D de microcristaux uniques ou la croissance de cristaux sous pince optique.

### 6.1 Pinces optiques femtosecondes

La très grande majorité des montages de pinces optiques utilise typiquement un laser de piégeage fonctionnant en mode continu. On a noté qu'avec des puissances en continu de seulement quelques mW, il est possible de réaliser la capture de micro-objets avec une grande efficacité. Pour certaines applications, il peut être extrêmement intéressant d'avoir la possibilité d'exciter la fluorescence d'un objet et, à la fois, de le piéger par une pince optique pour le manipuler afin qu'il puisse servir de sonde fluorescente au sein d'un milieu à étudier. La solution conventionnelle consisterait à utiliser plusieurs faisceaux lasers, par exemple un laser infrarouge pour le piégeage et un laser vert ou bleu pour exciter la fluorescence de l'objet par un mécanisme d'absorption à un photon. Ceci conduit à des montages très compliqués et difficile à régler [51].

A la différence des lasers continus, les lasers pulsés générant des impulsions femtosecondes de forte puissance crête instantanée permettent d'accéder à la génération de processus non linéaires au sein même des particules piégées, comme par exemple, des phénomènes d'absorption multiphotoniques, de doublage de fréquence ou de mélange de fréquences. Ce sont les travaux de Malmqvist [200] qui ont montré pour la première fois que pour des particules de Rayleigh (diamètre  $< \lambda$ ) capturées avec un laser pulsé, il est possible en même temps de maintenir la particule dans le piège et d'obtenir la génération

du second harmonique. L'expérience de pinces optiques avec un laser pulsé femtoseconde fut réalisée pour la première fois avec des particules de Mie (diamètre  $> \lambda$ ) en 2004, avec un laser saphir-titane à 800 nm [201]. Le laser fut utilisé en régime continu et pulsé pour attraper des billes de silice de 1,28  $\mu m$  et ces travaux démontrèrent qu'il est possible d'obtenir en régime pulsé la même efficacité de piégeage qu'en régime continu. En plus, il fut possible d'observer l'excitation de la fluorescence par absorption à deux photons de billes fluorescentes piégées.

Dans la comparaison entre la capture optique avec un faisceau continu ou avec un faisceau pulsé femtoseconde, il s'avère que les pinces optiques femtosecondes sont tout aussi efficaces que les pinces continues. En utilisant des particules fluorescentes, un aspect attrayant de ce travail est qu'en commutant simplement le laser saphir-titane entre le régime continu et le régime femtoseconde, il est possible de contrôler le signal de fluorescence de la particule piégée en la faisant passer in-situ alternativement en mode "ON" ou "OFF", tout en maintenant facilement l'action du piège optique. Cette technique permet ainsi de réaliser un marquage fluorescent contrôlable à volonté de particules non linéaires excitées par absorption à deux photons. Comme la fluorescence est bien connue pour offrir une très grande sensibilité de détection, il est possible de l'utiliser avec une puissance laser incidente moyenne bien au-dessous du seuil de dommage thermique des échantillons biologiques. Une application des pinces optiques femtosecondes peut être le dépistage et l'observation de fluorophores biologiques. Notons que la commercialisation récente de sources laser femtosecondes compactes pour des applications biologiques et médicales encourage les développements dans cette voie prometteuse.

Nous mêmes, nous avons réalisé une expérience de pinces optiques avec des impulsions femtosecondes en utilisant le microscope droit LEITZ décrit au paragraphe 4.6.2 et un laser saphir-titane fonctionnant à 790 nm avec des impulsions de 80 fs. La figure 6.1 montre des images d'une particule de latex de 1,0  $\mu m$  dopée avec un colorant carboxylé fluorescent lorsqu'elle est capturée avec le laser fonctionnant soit en régime pulsé, soit en régime continu. En régime pulsé, on observe la fluorescence des billes induite par l'absorption à deux photons, fluorescence qui ne peut être détectée en régime continu. Des expériences réalisées, on notera que pour des impulsions de forte puissance crête, correspondant à une puissance moyenne d'environ 200 mW, la fluorescence disparait en quelques secondes par suite du photo-blanchiment des molécules fluorescentes (Figure

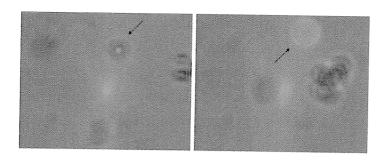


Fig. 6.1: Particule de latex de 1  $\mu m$  capturée avec le laser saphir-titane en mode continu à gauche et pulsé a droite. La fluorescence apparaît seulement lorsque le laser fonctionne en régime pulsé femtoseconde.

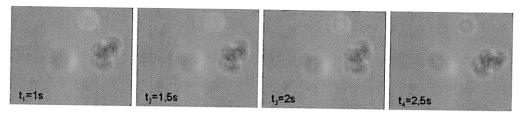


Fig. 6.2: Observation de la dégradation de fluorescence due aux effets de photoblanchiment des molécules de colorant à haute puissance moyenne d'irradiation.

6.2).

Il convient d'insister sur le point qu'il est important d'obtenir un équilibre satisfaisant entre la puissance nécessaire pour assurer un piégeage optique stable en régime femtoseconde et une émission de fluorescence suffisamment intense sans observer, ou très peu, de dégradation des propriétés de fluorescence des particules. Comme on l'a dejà dit, une application importante de cette technique consiste à utiliser les particules fluorescentes comme sondes ou marqueurs moléculaires que l'on peut guider grâce à la pince optique jusqu'en des endroits spécifiques d'une cellule par exemple. La réalisation effective de cette idée grâce à l'emploi d'un laser à impulsions ultra-courtes repose aussi sur le développement de marqueurs fluorescents particulièrement résistants au photoblanchiment sous un rayonnement pulsé femtoseconde intense.

## 6.2 Contrôle de l'orientation en 3D de micro-cristaux

Nous avons montré dans cette thèse la possibilité de manipuler des micro-cristaux organiques. Cependant, dans un faisceau gaussien focalisé, ces cristaux se placent toujours

dans une même orientation, à savoir celle où leur axe long est parallèle à la direction de propagation du faisceau. Il serait éminemment intéressant de pouvoir, à l'aide d'un seul faisceau laser, les manipuler et les orienter selon n'importe qu'elle direction de l'espace en agissant simplement sur un "joystick", à la manière de ce que l'on peut faire avec un logiciel de dessin 3D! A notre connaissance, ceci n'a jamais encore été fait sur un objet de taille microscopique. La technique de prédilection pour une telle tentative serait celle des pinces holographiques dont nous rappelons quelques principes dans ce qui suit.

### Pinces holographiques

La technique holographique utilisant un élément optique diffractif programmable comme un modulateur spatial de lumière ou SLM pour "Spatial Light Modulator" a apporté une contribution importante au perfectionnement des pinces optiques. Un SLM est un dispositif qui permet de modifier ou d'afficher des hologrammes utilisés comme filtre pour modifier les caractéristiques spatiales d'un faisceau, notamment en amplitude, phase ou polarisation. Il peut être piloté depuis un ordinateur, lequel à partir d'un programme définit l'hologramme. Ces hologrammes peuvent réaliser diverses fonctions : focaliser, répartir l'intensité dans plusieurs ordres de diffraction, contrôler la distribution spatiale d'un faisceau, ou bien réaliser toutes ces fonctions en même temps.

Le modulateur spatial de lumière, illuminé par le faisceau, ressemble à une sorte de grille, où les cases "opaques" et "transparentes" représentent respectivement les "0" et "1" de l'information à stocker. Il est dynamiquement reconfigurable en temps réel et il permet de moduler l'amplitude du laser, mais cela implique une perte d'énergie du faisceau incident. C'est pourquoi la modulation de phase est plus intéressante : il faut donc afficher sur le SLM des hologrammes de phase.

Normalement, un hologramme est créé par l'interférence entre deux faisceaux : un faisceau de référence et un faisceau image qui a été réfléchi sur un objet à trois dimensions. L'hologramme enregistre à la fois l'information sur la phase et l'amplitude. Lorsque l'on éclaire ultérieurement l'hologramme enregistré avec le faisceau de référence, une image de l'objet en trois dimensions se forme. Un grand nombre d'emplacements de piégeage sont ainsi produits en trois dimensions par les additions complexes et successives des hologrammes définissant différents pièges.

Pour concevoir des hologrammes, il existe des méthodes de calculs se basant sur des algorithmes complexes utilisant les transformées de Fourier. Ces algorithmes permettent

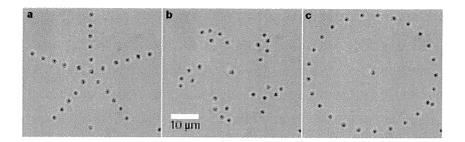


Fig. 6.3: Transformation d'un modèle pentagonal de sphères de silice à l'aide de pinces optiques holographiques. a- configuration originale de 26 sphères colloïdales de diamètre  $1 \mu m$ . b- après 16 étapes. c-configuration finale après 38 étapes.

non seulement de créer des rangées de pièges, mais d'imposer également des fronts d'onde de phase peu habituels à la lumière naturelle. Il faut d'abord établir le modèle de ce que l'on désire créer sur le plan des pinces optiques (par exemple un piège circulaire, un ensemble de pièges alignés ou encore une géométrie plus complexe) et calculer ensuite l'hologramme qui produira le modèle une fois illuminé par le rayon laser.

En choisissant par exemple de disposer les pinces holographiques sur un cercle (Figure 6.3), on réduirait le diamètre de celui-ci pour attraper une cellule entière, pour la faire tourner, ou mesurer les interactions que celle-ci aurait avec d'autres objets biologiques. Il pourrait être envisagé d'utiliser ce même procédé pour manipuler des cristaux.

La complexité des modèles réalisables de piégeage est cependant limitée dans la pratique par la nécessité de maintenir des gradients tridimensionnels d'intensité pour chaque piège, et par le contenu maximum de l'information qui peut être codé exactement à l'aide d'un SLM. Notamment, les possibilités limitées de modulation de phase du SLM peuvent nuire à la génération d'hologrammes. Aujourd'hui, les systèmes de pinces optiques holographiques peuvent encore être améliorés sur différents paramètres : le nombre et la densité de pixels, la résolution et la modulation disponible de phase et la vitesse de régénération pour projeter de nouveaux modèles de phase. Pour manipuler un microcristal unique à l'aide d'un seul faisceau laser, le défi consiste à faire la démonstration qu'il est possible de contrôler avec précision par un dispositif holographique par exemple, la distribution spatiale au point focal du faisceau, c'est-à-dire dans un volume micrométrique.

### 6.3 Croissance contrôlée de cristaux dans un piège optique

L'idée est d'utiliser des pinces optiques pour contrôler la croissance de cristaux. A notre connaissance, un premier travail a rapporté l'observation en temps réel de la croissance d'un cristal de protéine maintenu dans un piège optique pendant qu'augmentait la concentration en molécules de protéines dans la solution [202]. Il est clair que les pinces optiques peuvent offrir de réels avantages dans ce domaine en permettant de suivre les modifications survenant au cours de la croissance d'un monocristal en temps réel. Les paramètres de la solution de croissance peuvent être changés graduellement et leur influence étudiée en détail. Comme la croissance des cristaux peut être réalisée loin des parois du récipient contenant la solution, ceci favorise la synthèse de cristaux de grande qualité susceptibles de servir ultérieurement de germes pour ensemencer une nouvelle solution de croissance.

Nous avons réalisé une première tentative dans les conditions les plus simples, c'est-à-dire en déposant une goutte de solution contenant les molécules précurseurs de NBD-C8 et en réalisant les conditions d'une reprécipitation en présence du faisceau laser de la pince optique (Figure 6.4). Dans ces conditions, le résultat est décevant. Une autre approche préliminaire eut consisté à préparer d'abord des micro-cristaux dans un bécher par le procédé conventionnel de reprécipitation, mais sans laisser le processus aller jusqu'à son terme, puis déposer une goutte contenant les cristaux en suspension dans une cellule placée sur la platine du microscope, en piéger un et suivre la continuation de sa croissance en modifiant au besoin la concentration des ingrédients dans la solution. Cependant, si nous voulons être capables d'observer la formation des micro-cristaux dès leur début, il est important que ces micro-cristaux soient générés in-situ directement sur la platine du microscope.

Pour réaliser une telle expérience, il faut développer un dispositif spécial. Nous imaginons une cellule plate thermostatée alimenté par deux seringues pour l'introduction des solutions contenant les ingrédients nécessaires et disposant d'un canal d'extraction (Figure 6.5). Un problème est que dans un dispositif de croissance cristalline, il est nécessaire d'assurer les transferts de masse entre les produits en maintenant en permanence de bonnes conditions d'homogénéité. Ceci peut en principe être réalisé en connectant la cellule à une pompe dans le but d'assurer une circulation des fluides dans le dispositif. La cellule doit être transparente au rayonnement laser choisi et démontable, ce qui sera utile pour

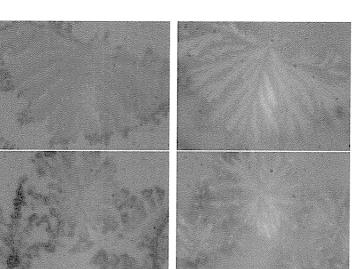


Fig. 6.4: Tentative de faire croître des cristaux de NBD-C8 dans une goutte liquide en présence d'un faisceau laser de piégeage. Au lieu d'un cristal bien formé, les images sous microscope révèlent de jolies arborescences fractales, à gauche en lumière normale, à droite entre polariseurs croisés.

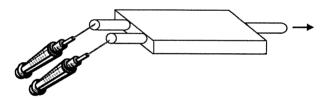


Fig. 6.5: Prototype de cellule pour réaliser la croissance sous pinces optiques de micro-cristaux.

la nettoyer ou pour récupérer les cristaux micro ou macroscopiques s'ils arrivent à se former. Ces cellules peuvent être fabriquées en utilisant les technologies développées en micro-fluidique.

La cellule ainsi conçue serait bien adaptée à la formation de micro-cristaux élaborés par un processus d'échange de solvants. Elle pourrait aussi être utilisée pour synthétiser des cristaux en faisant réagir deux solutions contenant des molécules précurseurs. Enfin, elle permettrait d'étudier l'influence du milieu en changeant les conditions expérimentales telles que la concentration des solutions ou l'adjonction d'additifs.

Les pinces optiques pourraient aussi être utilisées pour trier et sélectionner les germes d'intérêt dans le but d'ensemencer un nouveau milieu pour induire la formation d'un seul

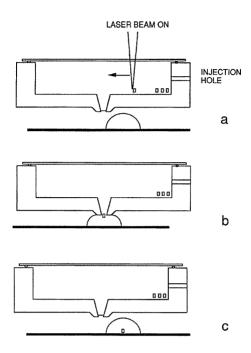


Fig. 6.6: La procédure pour ensemencer une goutte de solution utilise une cuvette de transfert. a- Solution mère et germes sont injectés dans la cuvette. Un faisceau laser sélectionne un germe et le pousse dans la cuvette jusqu'au drain. b- Positionné au dessus du drain, le germe est introduit dans la goutte à ensemencer et le laser est coupé. c- La goutte réceptrice est alors déplacée et le germe unique sélectionné est isolé [203].

type de cristal polymorphe (Figure 6.6). Un des enjeux de cette technique est de faire la démonstration qu'elle pourrait être utilisée pour la préparation de quantités macroscopiques de cristaux parfaitement homogènes du point de vue de leur morphologie. Ceci pourrait conduire à des applications du plus grand intérêt, en particulier en ce qui concerne l'industrie pharmaceutique pour laquelle le contrôle de la formation de polymorphes dans la préparation de médicaments cristallisés constitue un réel défi.

Un examen de la littérature publiée à ce jour révèle que la technique des pinces optiques peut offrir d'importants avantages lorsqu'elle est appliquée au problème de la cristallisation en permettant les manipulations in-situ sans contacts mécaniques. D'évidence, ce domaine de la croissance cristalline sous contrôle de pinces optiques est encore dans son enfance, mais il est sûrement promis à de grands développements.

### 6.4 Contrôle de biomoteurs moléculaires

Un moteur ou bio-moteur moléculaire est une grande macromolécule, une protéine, qui se lie spécifiquement à des filaments ou à des fibres et qui consomme un carburant chimique comme la molécule d'adénosine triphosphate ou ATP pour le transformer en travail mécanique et produire une force ou un déplacement. Le domaine concernant l'étude et la manipulation des bio-moteurs moléculaires a été l'un des plus bénéficiaires de l'introduction de la technique des pinces optiques. En particulier, l'étude de la motilité cellulaire qui inclut par exemple la contraction musculaire a pu être décrit comme jamais auparavant grâce à l'usage de cette technique. L'interaction cyclique d'un moteur moléculaire connu comme la myosine se déplaçant sur un filament d'actine, associée à l'hydrolyse de l'ATP qui fournit l'énergie nécessaire, intervient dans beaucoup de ces phénomènes de motilité cellulaire. Au cours de ce processus, la myosine modifie sa conformation pour engendrer un mouvement et un déplacement en appliquant une force sur le filament d'actine.

Ces études sont intensivement menées dans le groupe de Claudia Veigel du département de biochimie physique de l'Institut National de la Recherche Médicale à [58, 204–206]. Au cours de la réalisation du présent travail, j'ai bénéficié d'une opportunité d'effectuer un séjour dans le groupe de Claudia Veigel où j'ai pu réaliser mes premières incursions dans l'application des pinces optiques à l'étude de bio-moteurs moléculaires.

Les pinces optiques sont utilisées pour mesurer le mécanisme de transformation de la myosine quand elle est liée au filament d'actine. Le montage est développé autour d'un microscope de fluorescence inversé. Il utilise un laser Nd :YAG à  $1064 \ nm$  et un déflecteur acousto-optique contrôlé par une carte d'interface depuis un ordinateur pour former deux pièges optiques. Les deux pinces qui peuvent être contrôlées indépendamment s'utilisent dans une configuration telle que celle montrée sur la figure  $6.7 \ a.$ 

Les deux extrémités du filament d'actine sont greffées à deux billes de latex de  $1,1~\mu m$  de diamètre. En déplaçant une des billes de latex au moyen de l'une des pinces optiques, il est possible de tester l'adhésion du filament à la sphère. A l'aide des deux pinces, le filament se place sur une troisième bille qui a été fixée auparavant sur la surface du porte-échantillon. Cette sphère a été préalablement recouverte de manière espacée par des molécules de myosine, comme par exemple la méromyosine du lapin (HMM). L'interaction mécanique entre une molécule individuelle de HMM et le filament d'actine peut être détectée grâce à deux détecteurs de position à quatre quadrants positionnés de

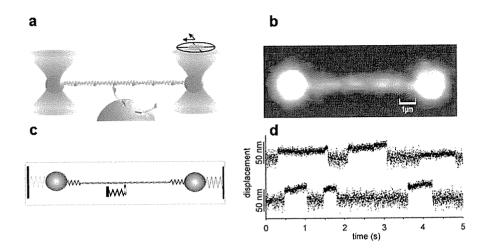


Fig. 6.7: Montage expérimental pour étudier le déplacement de la molécule de myosine le long d'un filament d'actine.

sorte qu'ils puissent détecter le mouvement de chacune des sphères de latex de 1,1  $\mu m$ . De cette façon, il est possible de mesurer la raideur d'un piège à partir du déplacement de la sphère capturée produit par le filament dont le mouvement est lui-même provoqué par le déplacement de la molécule de HMM sur lui. La figure 6.7 b montre comment on observe le filament et les billes dans l'expérience. La figure 6.7 c représente le modèle mécanique qui permet d'évaluer les forces. On y a représenté les constantes élastiques associées aux deux pièges et les constantes élastiques de l'adhésion aux sphères de latex soit du filament à ses extrémités, soit de la molécule de myosine. Finalement, la figure 6.7 d représente les signaux associés aux déplacements selon les directions x et y obtenus par le détecteur de position. Ce signal fait apparaître les différents pas que réalise la molécule de HMM sur le filament d'actine et la durée de chacun d'eux.

Pour que la molécule de HMM puisse fournir un travail, elle a besoin d'énergie qui lui est fournie par la molécule d'ATP que l'on doit additionner en concentrations connues pour déterminer l'effet qu'elle produit. La figure 6.8 montre comment sont vus les filaments d'actine en microscopie de fluorescence. Si on prépare une matrice où les molécules de HMM se trouvent fixées sur la surface du support comme le montre le schéma de la figure 6.8, il est possible d'observer le déplacement des filaments sur les molécules de myosine. Il est facile de constater au microscope comment les filaments d'actine commencent à se mouvoir avec l'addition d'ATP (Figure 6.9). Si on ajoute des

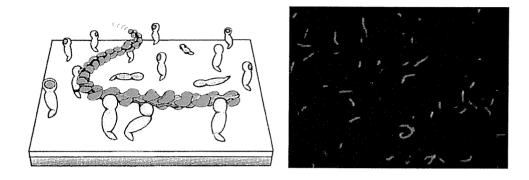


Fig. 6.8: Filaments d'actine observés en microscopie de fluorescence.

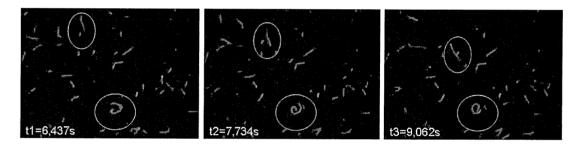


Fig. 6.9: Mouvement des filaments d'actine avec l'addition d'ATP.

quantités plus grandes d'ATP, les filaments d'actine se déplacent avec une plus grande vitesse à cause du déplacement plus rapide de la myosine. En utilisant une méthode de traitement d'images, il est possible de déterminer la vitesse à laquelle se meuvent les filaments en fonction de la concentration en ATP et de construire la courbe expérimentale qui représente cette dépendance. Cette expérience a permis d'étudier différentes familles de molécules de myosine et d'estimer leur participation à la motilité cellulaire en déterminant les forces produites par chacune d'elles et le mécanisme par lequel elles se déplacent le long du filament.

Parmis les multiples axes de développement futurs, soulignons les intérêts de ces études pour une recherche médicale. Si l'on regarde une cellule vivante sous un microscope optique, on peut observer de nombreux phénomènes dynamiques actifs comme la division et les mouvements cellulaires, le transport d'objets dans la cellule ou encore la formation et la disparition de structures intracellulaires. Ces phénomènes actifs se déroulent principalement dans le cytosquelette de la cellule. C'est un réseau de protéines fibreuses

qui confère à la cellule sa stabilité structurale, sa motilité et qui sert également à la transmission d'informations biologiques. Tridimensionnel, ce réseau est constitué de trois types d'éléments protéiques : les micro filaments d'actine, les filaments intermédiaires et les microtubules. Trois familles de moteurs sont distingués : kinésine, dynésine et myosine. Les kinésines travaillent avec les microtubules alors que les myosines sont impliquées avec les filaments d'actine dans le processus de contraction musculaire. L'étude de ces processus est un des champs prometteurs des pinces optiques en médecine pour l'étude des maladies cardiaques et musculaires.

## Chapitre 7 Conclusion générale

En finalisant notre mémoire de thèse, nous pouvons dire que nous avons construit une expérience de pinces optiques pour le piégeage et la mesure des forces induites par un faisceau laser de mode gaussien focalisé. En construisant notre expérience, nous avons aussi voulu montrer que même sans recourir à l'utilisation d'équipements coûteux, il est possible de réaliser un montage performant capable de permettre une évaluation précise des forces de piégeage sur de petites particules sphériques.

Nous avons étudié le comportement de deux classes de systèmes : des petites billes de forme parfaitement, ou seulement approximativement sphériques, soit homogènes, soit composites ou hybrides avec la présence d'un centre métallique, d'une part et des microcristaux, monocristaux d'une molécule fluorescente d'autre part.

Concernant le travail accompli avec les billes, nous avons comparé les forces éprouvées par ces particules pour trois situations distinctes : des sphères diélectriques homogènes avec des diamètres s'étendant de 100 nm jusqu'à 3,4  $\mu m$ , des colloïdes approximativement sphériques de silice pure d'environ 100 et 400 nm de diamètre et des nanoparticules composites contenant un noyau d'or métallique en leur centre, entouré d'une coquille en silice et d'un diamètre d'environ  $100 \ nm$ .

Les conclusions principales de cette étude sont récapitulées ci-dessous, d'abord concernant les particules colloïdales :

1. Nous avons observé un piégeage efficace même sur les plus petites particules contenant un noyau d'or et démontré le contrôle possible selon les 3 directions de l'espace, transversales x et y ou axiale z de ces particules. Pour les nanoparticules hybrides d'or-silice, la constante élastique du piège optique expérimentalement mesurée est plus forte que pour les nanoparticules de silice avec un diamètre semblable, et cette différence augmente avec la puissance du laser utilisé pour le piégeage. Ce résultat est en accord avec ce que l'on pouvait attendre de modèles simples prenant en compte la présence d'un cœur métallique au centre d'une bille diélectrique. Nous avons relevé

que des colloïdes composites or-silice de 100 nm de diamètre pouvaient être aussi facilement capturés que des particules de silice de plus grand diamètre. Ceci souligne l'influence de la présence du noyau métallique, en accord avec les prédictions des modèles théoriques que nous avons explicité. Plus de travail demeure encore nécessaire pour rendre la comparaison encore plus pertinente en utilisant des particules avec les mêmes diamètres extérieurs et des compositions intérieures différentes, c'est-à-dire différant par leur seule structure interne. Quoi qu'il en soit, notre étude montre que la présence d'un noyau métallique a un effet notable sur l'efficacité de piégeage, ce qui renforce l'idée qu'il est raisonnable d'imaginer travailler avec des particules composites extrêmement petites et adaptées à certaines applications spécifiques.

- 2. Le domaine des valeurs des coefficients élastiques des forces de piégeage que nous avons exploré se situe dans un intervalle compris entre 0,1 et 40 pN/μm pour les trois types de particules étudiées. Les forces minimales détectables que nous avons pu évaluer étaient d'environ 0,2 pN. Nous avons mesuré que le coefficient élastique était environ 50 fois plus fort pour les billes de latex de 1,1 μm que pour celles de seulement 100 nm. Nous avons aussi étudié l'influence de l'indice de réfraction des particules en comparant le comportement de billes de latex et de silice de 100 nm de diamètre. Nous avons ainsi noté que pour les billes de latex qui ont un plus fort indice, le coefficient élastique du piège est estimé être environ 2 fois plus élevé que pour les particules de silice dont l'indice est plus faible. Ce résultat est tout à fait conforme aux prédictions théoriques dans le cadre du régime de Rayleigh.
- 3. Nous avons aussi étudié l'influence de la profondeur du piège, c'est-à-dire la position du piège au-dessus de la surface supérieure de la lame porte-objet, et observé que la position de ce dernier dans le volume n'affecte pas la fréquence de coupure associée à la force du piège dans un domaine compris entre 2 et 14 μm de profondeur. En outre, nous avons noté que la profondeur à laquelle la particule peut être capturée dans une position stable diminue quand la puissance du laser est augmentée. Pour les particules de silice de 400 nm de diamètre, les distances de travail sont considérablement plus grandes, jusqu'à environ 170 μm à 20 mW de puissance que pour les billes de latex de 1 μm, approximativement seulement 20 μm à 10 mW.
- 4. Une influence de la direction de la polarisation de la lumière a été notée pour des

sphères de latex avec un diamètre de 1,1  $\mu m$ , tandis qu'on n'a pas observé un tel effet pour des sphères de latex avec un plus grand diamètre de 3,4  $\mu m$ , reflétant probablement le fait que dans le régime de l'optique géométrique, la polarisation de la lumière ne joue pas un rôle important.

5. Enfin, les mesures relatives effectuées à l'aide d'un détecteur de position à effet latéral ou d'une photodiode à 4 quadrants sont équivalentes qualitativement, cependant les valeurs absolues enregistrées avec l'un ou l'autre PSD sont différentes. Nous avons ainsi noté que les valeurs mesurées de la fréquence de coupure sur des billes de latex de 1,1 µm étaient environ 1,4 fois plus élevées avec le détecteur à 4 quadrants que celles obtenues avec le détecteur à effet latéral, alors qu'elles sont seulement 2 fois plus hautes pour les particules de latex de 100 nm de diamètre. Nous pensons que cette différence reflète essentiellement les caractéristiques très nettement différentes des deux types de PSD, notamment en ce qui concerne leur bande passante ou la dimension de la zone sensible. Bien sûr, cette observation, assez peu souvent relevée dans la littérature est d'importance lorsqu'il s'agit de comparer les mesures rapportées par différents auteurs. On concluera cependant que le détecteur 4 quadrants doit être préféré.

Concernant notre étude sur les microcristaux organiques, nos principaux résultats sont résumés ci-après :

- 1. Le comportement des microcristaux organiques est plus compliqué. De forme parallélépipédique, ils s'orientent de sorte que leur axe long soit dans la direction axiale du faisceau de piégeage. L'axe court s'oriente selon la direction de la polarisation linéaire du faisceau et peut donc tourner dans l'un ou l'autre sens si on fait tourner cette polarisation corrélativement.
- 2. En polarisation circulaire ou seulement elliptique, les cristaux se mettent spontanément en rotation avec des vitesses de rotation tout à fait élevées, jusqu'à 500 tours par seconde. C'est la première fois qu'un tel résultat est rapporté pour des particules de la taille de nos cristaux.
- 3. Un autre résultat surprenant pour lequel l'interprétation complète n'est pas donnée est que lorsqu'on augmente la puissance incidente du laser de piégeage, la vitesse de rotation augmente comme attendu mais après passage par un maximum, alors

que la puissance augmente toujours, la vitesse de rotation diminue jusqu'à arrêt complet de la rotation, et cette évolution n'est pas réversible! Nous attribuons ce comportement au fait que lorsque la vitesse de rotation augmente, le cristal peut manifester un mouvement plus complexe impliquant la présence d'une précession et la nécessité de prendre en compte les mouvements de friction et de frottements visqueux avec le fluide environnant.

4. Pour terminer, nous pouvons ajouter que la structure cristalline des microcristaux étudiés n'est pas connue. Grâce aux observations optiques que nous avons menées à l'aide de la microscopie en lumière polarisée, nous déduisons le caractère monocristallin des microcristaux, leur caractère biréfringent uniaxe et nous avançons des hypothèses sur leur structure cristalline probable.

Le travail accompli s'ouvre sur des perspectives qui représentent chacune un défi. Nous les avons évoquées dans ce mémoire : utilisation d'impulsions brèves pour simultanément piéger un objet et induire des effets non-linéaires; manipuler des objets non sphériques en 3D par le seul contrôle des propriétés spatiales du champ lumineux de piégeage; contrôler la croissance de micro-cristaux maintenus dans un piège optique. Au delà de ces possibilités d'études, il reste à aborder tout le champ immense des applications à la biologie ou à la médecine. C'est un domaine dans lequel je souhaiterais m'investir dans le futur. Les bases et l'expérience acquise au cours de ce travail sur la mesure et la calibration des forces de piégeage ou sur la manipulation et le contrôle d'objets non conventionnels seront de la plus grande utilité.

## Bibliographie

- [1] A. Ashkin, "History of optical trapping and manipulation of small neutral particles, atoms and molecules", extrait de "Single Molecule Spectroscopy", édité par R. Rigler, M. Orrit et T. Basché, Springer Series in Chemical Physics (2001) p. 1 31.
- [2] A. Ashkin, "Optical trapping and manipulation of neutral particles using lasers", *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **94** (1997) 4853.
- [3] A. Ashkin, "Acceleration and trapping of particles by radiation pressure", *Phys. Rev. Lett.* **24** (1970) 156.
- [4] G. Roosen et C. Imbert, "Optical levitation by means of two horizontal laser beams: a theoretical and experimental study", *Phys. Lett. A* **59** (1976) 6.
- [5] A. Ashkin et J. M. Dziedzic, "First single-beam trap used to levitated a particle in air", Appl. Phys. Lett 19 (1971) 283.
- [6] A. Ashkin, "The pressure of laser light" Scientific American 226 (1972) 63.
- [7] A. Ashkin et J. M. Dziedzic, "Optical levitation in high vacuum", Appl. Phys. Lett 28 (1976) 333.
- [8] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorklholm et S. Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles", *Opt. Lett.* 11 (1986) 288.
- [9] A. Ashkin et J. M. Dziedzic, "Optical trapping and manipulation of viruses and bacteria", Science 235 (1987) 1517.
- [10] A. Ashkin, J. M. Dziedzic et T. Yamane, "Optical trapping and manipulation of single cells using infrared laser beams", *Nature* 330 (1987) 769.
- [11] M. J. Lang et S. M. Block, "Resource Letter: LBOT-1: Laser based optical tweezers", Am. J. Phys. 71 (2003) 201.
- [12] R. R. Agayan, F. Gittes, R. Kopelman et C. F. Schmidt, "Optical trapping near resonance absorption", Appl. Opt. 41 (2002) 2318.
- [13] K. Svoboda et S. M. Block, "Optical trapping of metallic Rayleigh particles", Opt. Lett. 19 (1994) 930.
- [14] P. M. Hansen, V. K. Bhatia, N. Harrit et L. Oddershede, "Expanding the optical trapping range of gold nanoparticles", *Nano Lett.* 5 (2005) 1937.
- [15] Y. Seol, A. E. Carpenter et T. T. Perkins, "Gold nanoparticles: enhanced optical trapping and sensitivity coupled with significant heating", Opt. Lett. 31 (2006) 2429.
- [16] A. Cotton et H. Mouton, "Les ultramicroscopes et les objets ultramicroscopiques", Masson, 1906.

[17] M. Alejandro-Arrellano, T. Ung, A. Blanco, P. Mulvaney et L. M. Liz-Marzán, "Silica-coated metals and semiconductors. Stabilization and nanostructuring", *Pure Appl. Chem.* **72** (2000) 257.

- [18] J. Rodriguez-Fernández, I. Pastoriza-Santos, J. Pérez-Juste, F. J. García de Abajo et L. M. Liz-Marzán, "The effect of silica-coating on the optical response of sub-micrometer gold spheres", J. Phys. Chem. C 111 (2007) 13361.
- [19] S. Mandal, S. Phadtare et M. Sastry, "Interfacing biology with nanoparticles", Curr. Appl. Phys. 5 (2005) 118.
- [20] S. Féry-Forgues, A. Ibanez et B. Dubertret, "Micro- et nanocristaux luminescents", L'actualit'e chimique 317 (2008) 42.
- [21] "Single organic nanoparticles", édité par H. Masuhara, H. Nakanishi et K. Sasaki, Springer Verlag Berlin (2003).
- [22] Johannes Kepler, "De Cometis libelli tres", Augsbourg (1619).
- [23] Isaac Newton, "Opticks: Or a treatise of the reflections, refractions, inflections and colours of light", *Printers to the Royal Society, at the Prince's-Arms in St. Paul's Church-Yard* (1704).
- [24] J. C. Maxwell, "A Treatise on electricity and magnetism", Macmillan and Co., London Vol. 2 (1873) p. 391 et suivantes.
- [25] A. G. Bartoli, "Sopra i movimenti prodotti dalla luce e dal calore e sopra il radiometro di Crookes", Le Monier (Firence) et Fortschritte der Physik. 2 (1876) 888.
- [26] A. G. Bartoli, "Il calorico raggiante e il secondo principio di termodynamica", *Nuovo Cimento* 15 (1884) 196.
- [27] P. N. Lebedev "Experimental examination of light pressure", Ann. der Physik 6 (1901) 433 (traduit du russe par V. Soloviev).
- [28] V. Lembessis, "P. N. Lebedev and light radiation pressure", Europhysics News 32 (2001) 16.
- [29] E. F. Nichols et G. F. Hull, "The pressure due to radiation", *Phys. Rev. (Series I)* 17 (1903) 26 et ibid. 91.
- [30] G. Mie, "Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen", Ann. der Physik 25 (1908) 377.
- [31] M. Born et E. Wolf, "Principles of optics", Cambridge University Press, 7ème édition (1999) Chap. 14.5.
- [32] A. Ashkin et J. M. Dziedzic, "Observation of radiation-pressure trapping of particles by alternating light beams", *Phys. Rev. Lett.* **54** (1985) 1245.

[33] A. V. Kats et V. M. Kantorovich, Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.-Pis'ma Redakt. 9 (1969) 192 (traduit du russe dans JETP Letters 9 (1969) 112).

- [34] A. Ashkin, "Atomic-beam deflection by resonance-radiation pressure", *Phys. Rev. Lett.* **25** (1970) 1321.
- [35] A. Ashkin et J. P. Gordon, "Stability of radiation-pressure particle traps : an optical Earnshaw theorem", Opt. Lett. 8 (1983) 511.
- [36] A. Ashkin, "Applications of laser radiation pressure", Science 210 (1980) 1081.
- [37] V. S. Letokhov et V. G. Minogin, "Laser radiation pressure on free atoms", Phys. Rep. 73 (1981) 1.
- [38] A. Ashkin, "Trapping of atoms by resonance radiation pressure", Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 729.
- [39] J. P. Gordon et A. Ashkin, "Motion of atoms in a radiation trap", *Phys. Rev.* A 21 (1980) 1606.
- [40] K. F. Ren, G. Greha et G. Gouesbet, "Radiation pressure forces exerted on a particle arbitrarily located in a Gaussian-beam by using the generalized Lorenz-Mie theory, and associated resonance effects", *Opt. Comm.* **108** (1994) 343.
- [41] A. Rohrbach et E. H. K. Stelzer, "Optical trapping of dielectric particles in arbitrary fields", J. Opt. Soc. Am. A 18 (2001) 839.
- [42] J.-M. Fournier, M. M. Burns et J. A. Goloychenko, "Writing diffractive structures by optical trapping", *Proc. SPIE* **2406** (1995) 101.
- [43] J. E. Curtis, B.A. Kross et D. G. Grier, "Dynamic holographic optical tweezers", Opt. Comm. 207 (2002) 169.
- [44] M. Reicherter, T. Haist, E. U. Wagemann et H. J. Tiziani, "Optical particle trapping with computer-generated holograms written on a liquid-crystal display", Opt. Lett. 24 (1999) 608.
- [45] A. Rohrbach, "Switching and measuring a force of 25 femtoNewtons with an optical trap", Opt. Exp. 13 (2005) 9695.
- [46] M. P. McDonald, G. C. Spalding et K. Dholakia, "Microfluidic sorting in an optical lattice", *Nature* 426 (2003) 3562.
- [47] D. McGloin, "Optical tweezers : 20 years on", Phil. Trans. R. Soc. A 364 (2006) 3521.
- [48] J. E. Curtis et D. G. Grier, "Modulated optical vortices", Opt. Lett. 28 (2003) 872.
- [49] A. Pralle, P. Keller, E. L. Florin, K. Simons et J. K. H. Hörber, "Sphingolipidcholesterol rafts diffuse as small entities in the plasma membrane of mammalian cells", J. Cell Biol. 148 (2000) 997.

[50] M. J. Lang, P. M. Fordyce et S. M. Block, "Combined optical trapping and single-molecule fluorescence", J. Biology 2 (2003) 6.

- [51] M. J. Lang, P. M. Fordyce, A. M. Engh, K. C. Neuman et S. M. Block, "Simultaneous, coincident optical trapping and single-molecule fluorescence", *Nature Methods* 1 (2004) 133.
- [52] G. V. Shivashankar et A. Libchaber, "Single DNA molecule grafting and manipulation using a combined atomic force microscope and an optical tweezer", *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) 3727.
- [53] I. A. Vorobjev, H. Liang, W. H. Wright et M. W. Berns, "Optical trapping for chromosome manipulation: a wavelength dependence of induced chromosome bridges", *Biophys. J.* **64** (1993) 533.
- [54] E. A. Abbondanzieri, W. J. Greenleaf, J. W. Shaevitz, R. Landick et S. M. Block, "Direct observation of base-pair stepping by RNA polymerase", *Nature* **438** (2005) 460.
- [55] U. Bockelmann, "Single-molecule manipulation of nucleic acids", Current Opinion in structural Biology 14 (2004) 368.
- [56] U. Bockelmann, P. Thomen, B. Essevaz-Roulet, V. Viasnoff et F. Heslot, "Unzipping DNA with optical tweezers: High sequence sensitivity and force flips", Biophys. J. 82 (2002) 1537.
- [57] C. Veigel, L. M. Coluccio, J. D. Jontes, J. C. Sparrow, R. A. Milligan et J. E. Molloy, "The motor protein myosin-I produces its working stroke in two steps", *Nature* 398 (1999) 530.
- [58] C. Veigel, F. Wang, M. L. Bartoo, J. R. Sellers et J. E. Molloy, "The gated gait of the processive molecular motor, myosin V", *Nature Cell Biology* 4 (2002) 59.
- [59] J. Conia et S. Voelkel, "Optical manipulations of human gametes", Biotechniques 17 (1994) 6.
- [60] P. Galajda et P. Ormos, "Rotors produced and driven in laser tweezers with reversed direction of rotation", Appl. Phys. Lett. 80 (2002) 4653.
- [61] I. I. Smalyukh, A. N. Kuzmin, A. V. Kachynski, P. N. Prasad et O. D. Lavrentovich, "Optical trapping of colloidal particles and measurement of the defect line tension and colloidal forces in a thermotropic nematic liquid crystal", Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 021913.
- [62] D. L. J. Vossen, A. van der Horst, M. Dogterom et A. van Blaaderen, "Optical tweezers and confocal microscopy for simultaneous three-dimensional manipulation and imaging in concentrated colloidal dispersions", Rev. Sci. Instrum. 75 (2004) 2960.
- [63] D. V. Petrov, "Raman spectroscopy of optically trapped particles", J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 9 (2007) S139.

[64] P. Y. Chiou, A. T. Ohta et M. C. Wu, "Massively parallel manipulation of single cells and microparticles using optical images", *Nature* **436** (2005) 370.

- [65] R. K. Iler, U.S. Patent. 2,885,366 (1959).
- [66] M. Ohmori et E. Matijević, "Preparation and properties of uniform coated colloidal particles. VII. Silica on hematite", J. Colloid Interface Sci., 150 (1992) 594.
- [67] A. P. Philipse, M. P. B. van Bruggen et C. Pathmamanoharan, "Magnetic silica dispersions: preparation and stability of surface-modified silica particles with a magnetic core", Langmuir 10 (1994) 92.
- [68] S.-Y. Chang, L. Liu et S. A. Asher, "Preparation and properties of tailored morphology, monodisperse colloidal silica-cadmium sulfide nanocomposites", *J. Am. Chem. Soc.* 116 (1994) 6739.
- [69] Y. Lu, Y. Yin, B. T. Mayers et Y. Xia, "Modifying the surface properties of superparamagnetic iron oxide nanoparticles through a sol-gel approach", *Nano Lett.* 2 (2002) 183.
- [70] W. E. Doering et S. M. Nie, "Spectroscopic tags using dye-embedded nanoparticles and surface-enhanced Raman scattering", *Anal. Chem.* **75** (2003) 6171.
- [71] F. Yan, H. Xu, J. Anker, R. Kopelman, B. Ross, A. Rehemtulla et R. Reddy, "Synthesis and characterization of silica-embedded iron oxide nanoparticles for magnetic resonance imaging", J. Nanosci. Nanotechnol. 4 (2004) 72.
- [72] S. L. R. Barker, H. A. Clark, S. F. Swallen, R. Kopelman, A. W. Tsang et J. A. Swanson, "Ratiometric and fluorescence lifetime-based biosensors incorporating cyto-chrome c and the detection of extra- and intracellular macrophage nitric oxide", Anal. Chem. 71 (1999) 1767.
- [73] P. Viravathana et D. W. M. Marr, "Optical trapping of titania/silica core-shell colloidal particles", J. Colloid Interface Sci. 221 (2000) 301.
- [74] R. R. Agayan, T. Horvath, B. H. McNaughton, J. N. Anker et R. Kopelman, "Optical manipulation of metal-silica hybrid nanoparticles", *Optical Trapping and Optical Micromanipulation*, *Proceedings of SPIE* **5514** (2004) 502.
- [75] M. Padgett et L. Allen, "Light with a twist in its tail", Contemp. Phys. 41 (2000) 275.
- [76] N. B. Simpson, K. Dholakia, L. Allen et M. J. Padgett, "Mechanical equivalence of spin and orbital angular momentum of light: an optical spanner", *Opt. Lett.* **22** (1997) 52.
- [77] E. Higurashi, R. Sawada et T. Ito, "Optically induced angular alignment of trapped birefringent micro-objects by linearly polarized light", *Phys. Rev.* E **59** (1999) 3676.

[78] H. Ukita et M. Kanehira, "A shuttlecock optical rotator : its design, fabrication and evaluation for a microfluidic mixer", *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 8 (2002) 111.

- [79] A. T. O'Neil et M. J. Padgett, "Rotational control within optical tweezers by use of a rotating aperture", Opt. Lett. 27 (2002) 743.
- [80] R. A. Beth, "Mechanical detection and measurement of the angular momentum of light", *Phys. Rev.* **50** (1936) 115.
- [81] P. J. Allen, "A radiation torque experiment", Am. J. Phys. 34 (1966) 1185.
- [82] S. Chang et S. S. Lee, "Optical torque exerted on a homogeneous sphere levitated in the circularly polarized fundamental-mode laser beam", J. Opt. Soc. Am. B 2 (1985) 1853.
- [83] L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw et J. P. Woerdman, "Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes", *Phys. Rev.* A 45 (1992) 8185.
- [84] H. He, M. E. J. Friese, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop, "Direct observation of transfer of angular momentum to absorptive particles from a laser beam with a phase singularity", *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 826.
- [85] M. E. J. Friese, "Optical angular-momentum transfer to trapped absorbing particles", Phys. Rev. A 54 (1996) 1593.
- [86] M. E. J. Friese, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg et H.Rubinsztein-Dunlop "Optical torque controlled by elliptical polarization", *Opt. Lett.* **23** (1998) 1.
- [87] R. C. Gauthier, "Theoretical investigation of the optical trapping force and torque on cylindrical micro-objects", J. Opt. Soc. Am. B 14 (1997) 3323.
- [88] A. I. Bishop, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical application and measurement of torque on microparticles of isotropic non absorbing material", *Phys. Rev.* A 68 (2003) 033802.
- [89] S. Bayoudh, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop, "Orientation of biological cells using plane-polarized gaussian beam optical tweezers", J. Mod. Opt. 50 (2003) 1581.
- [90] K. D. Bonin, B. Kourmanov et T. G. Walker, "Light torque nanocontrol, nanomotors and nanorockers", Opt. Exp. 10 (2002) 984.
- [91] E. Higurashi, O. Ohguchi, T. Tamamura, H. Ukita et R. Sawada, "Optically induced rotation of disymmetrically shaped fluorinated polymide micro-objects in optical traps", J. Appl. Phys. 82 (1997) 2773.

[92] M. E. J. Friese, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical alignment and spinning of laser-trapped microscopic particles", Nature, 394 (1998) 348; "Erratum: optical alignment and spinning of laser-trapped microscopic particles", Nature 395 (1998) 621.

- [93] A. I. Bishop, T. A. Nieminen, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical microrheology using rotating laser-trapped particles", Phys. Rev. Lett. 92 (2004) 198104.
- [94] A. La Porta et M. D. Wang, "Optical torque wrench: angular trapping, rotation and torque detection of quartz microparticles", *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 190801.
- [95] E. Higurashi, R. Sawada et T. Ito, "Optically induced angular alignment of birefringent micro-objects by linear polarization", Appl. Phys. Lett. 73 (1998) 3034.
- [96] W. Singer, T. A. Nieminen, U. J. Gibson, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop "Orientation of optically trapped nonspherical birefringent particles", *Phys. Rev.* E 73 (2006) 021911.
- [97] R. C. Gautier, M. Ashman, A. Frangioudakis, H. Mende et S. Ma, "Radiation-pressure-based cylindrically shaped microactuator capable of smooth, continous, reversible and stepped rotation", Appl. Opt. 38 (1999)4850.
- [98] E. Higurashi, H. Ukita, H. Tanaka et O. Ohguchi, "Optically induced rotation of anisotropic micro-objects fabricated by surface micromachining", Appl. Phys. Lett. 64 (1994) 2209.
- [99] R. C. Gautier, "Theoretical model for an improved radiation pressure micromotor", *Appl. Phys. Lett.* **69** (1996) 2015.
- [100] H. Ukita et K. Nagatomi, "Theoretical demonstration of a micro-rotator driven by optical pressure on the light incident surface", Opt. Rev. 4 (1997) 447.
- [101] E. Higurashi, R. Sawada et T. Ito "Optically induced rotation of a trapped microobject about an axis perpendicular to the laser beam axis", Appl. Phys. Lett. 72 (1998) 2951.
- [102] T. A. Nieminen, H. Rubinsztein-Dunlop et N. R. Heckenberg, "Angular momentum generation by scattering: alignment and rotation of microobjects", 6th Conference on Electromagnetic and Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements and Applications, Gainesville, USA, (2002) 239.
- [103] A. Ashkin, "Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime", Biophys. J. 61 (1992) 569.
- [104] J. Bechhoefer et S. Wilson, "Faster, cheaper, safer optical tweezers for the undergraduate laboratory", Am. J. Phys. 70 (2002) 393.
- [105] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics", Chap. 4.4, John Wiley and Sons Inc.,  $3\grave{e}me$ édition, 1999.

[106] D. A. White, "Numerical modeling of optical gradient traps using the vector finite element method", J. Comp. Phys. 159 (2000) 13.

- [107] P. A. M. Neto et H. M. Nussenzveig, "Theory of optical tweezers", Europhys. Lett. 50 (2000) 702.
- [108] T. A. Nieminen, H. Rubinsztein-Dunlop, N. R. Heckenberg et A. I. Bishop, "Numerical modelling of optical trapping", Comp. Phys. Comm. 142 (2001) 468.
- [109] M. I. Mishchenko, G. Videen, V. A. Babenko, N. G. Khlebtsov et T. Wriedt, "T-matrix theory of electromagnetic scattering by particles and its applications: a comprehensive reference database", J. Quant. Spec. Rad. Trans. 88 (2004) 357.
- [110] M. I. Mishchenko, G. Videen, V. A. Babenko, N. G. Khlebtsov et T. Wriedt, "Comprehensive T-matrix reference database: a 2004-06 update", J. Quant. Spec. Rad. Trans. 106 (2007) 304.
- [111] T. A. Nieminen, V. L. Y. Loke, A. B. Stilgoe, G. Knöner, A. M. Branczyk, N. R. Heckenberg et H. Rubinsztein-Dunlop, "Optical tweezers computational toolbox", J. Opt. A 9 (2007) S196.
- [112] Y.-R. Chang, L. Hsu et S. Chi, "Optical trapping of a spherically symmetric sphere in the ray-optics regime: a model for optical tweezers upon cells", *Appl. Opt.* 45 (2006) 3885.
- [113] Y. Harada et T. Asakura, "Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime", Opt. Comm. 124 (1996) 529.
- [114] J. C. Maxwell-Garnett, "Colors in metal glasses and in metallic films", *Phil. Trans. Roy. Soc.* A 203 (1904) 385; "Colors in metal glasses, in metallic films and in metallic solutions", *idid.* A 205 (1906) 237.
- [115] D. A. G. Bruggeman, "Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizittskonstanten und Leitfhigkeiten der Mischkrper aus isotropen Substanzen", Ann. der Physik 416 (1935) 636.
- [116] H. S. Zhou, I. Homma, H. Komiyama et J. W. Haus, "Controlled synthesis and quantum-size effect in gold-coated nanoparticles", *Phys. Rev.* B **50** (1994) 12052.
- [117] Caractéristiques optiques de diverses substances et métaux, http://www.luxpop.com/.
- [118] Y.-R. Chang, L. Hsu et S. Chi, "Optical trapping of a spherically symmetric Rayleigh sphere: a model for optical tweezers upon cells", Opt. Comm. 246 (2005) 97.
- [119] R. C. Gauthier, "Ray optics model and numerical computations for the radiation pressure micro-motor", Appl. Phys. Lett. 67 (1995) 2269.
- [120] R. C. Gauthier, "Trapping model for the low-index ringshaped micro-object in a focused lowest-order Gaussian laser beam profile", J. Opt. Soc. Am. B 14 (1997) 782.

[121] M. I. Mishchenko, L. D. Travis et J. W. Hovenier, "Light scattering by non spherical particles", *Academic Press* (1999).

- [122] T. Wriedt, "Electromagnetic scattering programs", http://www.t-matrix.de
- [123] P. J. Flatau, "SCATTERLIB", http://atol.ucsd.edu/pflatau/scatlib/scatterlib.htm
- [124] M. I. Mishchenko, L. D. Travis et D. W. Mackowski, "T-matrix codes for computing electromagnetic scattering by nonspherical and aggregated particles", http://www.giss.nasa.gov/crmim/
- [125] T. A. Nieminen, H. Rubinsztein-Dunlop et N. R. Heckenberg, "Calculation and optical measurement of laser trapping forces on non-spherical particles", *J. Quant. Spec. Rad. Trans.* **70** (2001) 627.
- [126] G. Roosen, "Optical levitation of spheres", Can. J. Phys. 57 (1979) 1260.
- [127] K. Visscher et G. J. Brakenhoff, "Theoretical study of optically induced forces on spherical particles in a single beam trap I: Rayleigh scatterers", Optik 89 (1992) 174.
- [128] K. Visscher et G. J. Brakenhoff, "Theoretical study of optically induced forces on spherical particles in a single beam trap II: Mie scatterers", Optik 90 (1992) 57.
- [129] T. Wholand, A. Rosin et E. H. K. Stelzer, "Theoretical determination of the influence of the polarization on forces exerted by optical tweezers", Optik 4 (1996) 181.
- [130] J. P. Barton et D. R. Alexander, "Fifth-order corrected electromagnetic fields components for a fundamental Gaussian beam", J. Appl. Phys. 66 (1989) 2800.
- [131] J. P. Barton, D. R. Alexander et S. A. Schaub, "Theoretical determination of net radiation force and torque for a spherical particle illuminated by a focused laser beam", J. Appl. Phys. 66 (1989) 4594.
- [132] R. Gussgard, T. Lindmo et I. Brevik, "Calculation of the trapping force in a strongly focused laser-beam", J. Opt. Soc. Am. B 9 (1992) 1922.
- [133] T. Tlusty, A. Meller et R. Bar-Ziv, "Optical gradient forces of strongly localized fields", J. Appl. Phys. 64 (1988) 1632.
- [134] M. W. Beijersbergen, R. P. C. Coerwinkel, M. Kristensen et J. P. Woerdman, "Helical-Wave front laser-beams produced with a spiral phase plate", Opt. Comm. 112 (1994) 321.
- [135] K. T Gahagan et G. A. Swartzlander, "Optical vortex trapping of particles", Opt. Lett. 112 (1996) 827.
- [136] E. R. Dufresne, G. C. Spalding, M. T. Dearing, S. A. Sheets et D. G. Grier, "Computer generated holographic optical tweezer arrays", Rev. Sci. Instrum. 72 (2001) 1810.

[137] J. E. Curtis, B. A. Koss et D. G. Grier, "Dynamic holographic optical tweezers", Opt. Comm. 207 (2002) 169.

- [138] R. Oron, S. Blit, N. Davidson, A. A. Friesem, Z. Bomzon et E. Hasman, "The formation of laser beams with pure azimuthal or radial polarization", *Appl. Phys. Lett.* **77** (2000) 3322.
- [139] M. W. Beijersbergen, L. Allen, H. Vanderveen et J. P. Woerdman, "Astigmatic laser mode converters and transfer of orbital angular-momentum", Opt. Comm. 96 (1993) 123.
- [140] N. B. Simpson, L. Allen et M. J. Padgett, "Optical tweezers and optical spanners with Laguerre-Gaussian modes", J. Mod. Opt. 43 (1996) 2485.
- [141] K. Sasaki, M. Koshioka, H. Misawa, N. Kitamura et H. Masuhara, "Optical trapping of a metal-particle and a water droplet by a scanning laser-beam", Appl. Phys. Lett. 60 (1992) 897.
- [142] C. Saloma et X. M. Xu, "The dielectric microsphere in a single plane polarized Gaussian beam : characteristics of the radiation force", *Optik* 94 (1993) 173.
- [143] T. C. Bakker Schut, G. Hesselink, B. G. De Groot et J. Greve, "Experimental and theoretical investigation of the validity of the geometrical optics model for calculating the stability of optical traps", *Cytometry* 12 (1991) 479.
- [144] T. R. M. Sales, "Smallest focal spot", Phys. Rev. Lett. 81 (1998) 3844.
- [145] S. Quabis, R. Dorn, M. Eberler, O. Glöckl et G. Leuchs, "Focusing light to a tighter spot", Opt. Comm. 179 (2000) 1.
- [146] R. Dorn, S. Quabis et G. Leuchs, "Shaper focus for a radially polarized light beam", *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 233901.
- [147] R. Dorn, S. Quabis et G. Leuchs, "The focus of light-linear polarization breaks the rotational symmetry of the focal spot", J. Mod. Opt. 50 (2003) 1917.
- [148] B. Richards et E. Wolf, "Electromagnetic diffraction in optical systems II.Structure of the image field in an aplanetic system", *Proc. R. Soc. London A* **253** (1959) 358.
- [149] J. J. Stamnes, "Waves in focal regions: propagation, diffraction and focusing of light, sound and water waves", Series on Optics and Optoelectronics, Taylor & Francis (1986).
- [150] R. Kant, "An analytical solution of vector diffraction problems for focusing optical systems", J. Mod. Opt. 40 (1993) 337.
- [151] C. J. R. Sheppard et P. Török, "Efficient calculation of electromagnetic diffraction in optical systems using a multipole expansion", J. Mod. Opt. 44 (1997) 803.

[152] K. Lindfors, T. Setälä, M. Kaivola et A. T. Friberg, "Degree of polarization in tightly focused optical fields", J. Opt. Soc. Am. A 22 (2005) 561.

- [153] K. Lindfors, A. Priimagi, T. Setälä, A. Shevchenko, A. T. Friberg et M. Kaivola, "Local polarization of tightly focused unpolarized light", *Nature Photonics* 1 (2007) 228.
- [154] N. van Hulst, "Orienting out of a tight spot", Nature Photonics 1 (2007) 208.
- [155] P. Galajda et P. Ormos, "Orientation of flat particles in optical tweezers by lineary polarized light", *Opt. Exp.* 11 (2003) 446.
- [156] S. Sato, M. Ishigure et H. Inaba, "Optical trapping and rotational manipulation of microscopic particles and biological cells using higher-order mode Nd: YAG laser beams", *Electronics Lett.* **27** (1991) 1831.
- [157] A. T. O'Neil et M. J. Padgett, "Rotational control within optical tweezers by use of a rotating aperture", Opt. Lett. 27 (2002) 743.
- [158] V. Bingelyte, J. Leach, J. Courtial et M. J. Padgett, "Optically controlled three-dimensional rotation of microscopic objects", Appl. Phys. Lett. 82 (2003) 829.
- [159] Cell Robotics International Inc. (Albuquerque, USA); P.A.L.M. GmBH (Bernried, Germany); Arrxy Inc. (Chicago, USA), "Technologies disponibles: pinces optiques, ciseaux optiques, sélecteur cellulaires", http://www.cellrobotics.com.
- [160] J. W. Shaevitz, "A practical guide to optical trapping", http://geno-mics.princeton.edu/shaevitzlab/OT\_Practicle\_Guide.pdf (2006).
- [161] A&A Opto-Electronic Quanta Tech, "A complete acousto-optic 2 axis deflection set for optical tweezing applications", http://opto.braggcell.com/uploads/files/optical-tweezers1.pdf.
- [162] V. Emiliani, D. Sanvitto, M. Zahid, F. Gerbal et M. Coppey-Moisan, "Multi force optical tweezers to generate gradients of forces", Opt. Exp. 12 (2004) 3906.
- [163] K. Visscher, S. P. Gross et S. M. Block, "Construction of multiple-beam optical traps with nanometer-resolution position sensing", *IEEE J. Sel. Top. Quant. Elec.* 2 (1996) 1066.
- [164] W. Denk et W. W. Webb, "Optical measurement of picometer displacements of transparent microscopic objects", Appl. Opt. 29 (1991) 2382.
- [165] K. Svoboda, C. F. Schmidt, B. J. Schnapp et S. M. Block, "Direct observation of kinesin stepping by optical trapping interferometry", Nature 365 (1993) 721.
- [166] G. Nomarski, "Microinterféromètre différentiel à ondes polarisées", J. Phys. Radium 16 (1955) S9.

- [167] R. Allen, G. David et G. Nomarski, "The Zeiss-Nomarski differential interference equipment for transmitted-light microscopy", Zeitschrift fr Wissenschaftliche Mikroskopie und Mikroskopische Technike 69 (1969) 193.
- [168] M. Capitanio, G. Romano, R. Ballerini et M. Giuntini, "Calibration of optical tweezers with differential interference contrast signals", Rev. Sci. Inst. 73 (2002) 1687.
- [169] F. Gittes et C. F. Schmidt, "Interference model for back-focal-plane displacement detection in optical tweezers", Opt. Lett. 23 (1998) 7.
- [170] G. E. Uhlenbeck et L. S. Ornstein, "On the theory of the brownian motion", *Phys. Rev.* **36** (1930) 823.
- [171] P. Reimann et M. Evstigneev, "Description of atomic friction as forced brownian motion", New Journal of Physics 7 (2005) 25.
- [172] S. B. Smith, Y. Cui et C. Bustamante, "Overstretching B-DNA: the elastic response of individual double-stranded and single-stranded DNA molecules", Science 271 (1996) 795.
- [173] S. B. Smith, Y. Cui et C. Bustamante, "Optical-trap force transducer that operates by direct measurement of light momentum", *Methods Enzymol.* **361** (2003) 134.
- [174] W. Grange, S. Husale, H.-J. Güntherodt et M. Hegner, "Optical tweezers system measuring the change in light momentum flux", Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 2308.
- [175] P. M. Hansen, I. M. Tolić-Norrelykke, H. Flyvbjerg et K. Berg-Sorensen, "Tweezer-calib 2.1: Faster version of MatLab package for precise calibration of optical tweezers", Comp. Phys. Comm. 175 (2006) 572.
- [176] I. M. Tolić-Norrelykke, K. Berg-Sorensen et H. Flyvbjerg, "MatLab program for precision calibration of optical tweezers", Comp. Phys. Comm. 159 (2004) 225.
- [177] P. M. Hansen, I. Marija Tolić-Norrelykke, H. Flyvbjerg et K. Berg-Sorensen, "Twee-zercalib 2.0: Faster version of MatLab package for precise calibration of optical twee-zers", Comp. Phys. Comm. 174 (2006) 518.
- [178] Programmes source des routines MatLab Tweezer Calib<br/>2.1,  $http://cpc.cs.qub.ac.uk/summaries/ADTV\_v2\_1.html.$
- [179] K. Berg-Sorensen et H. Flyvbjerg, "Power spectrum analysis for optical tweezers", Rev. Sci. Inst. 75 (2004) 594.
- [180] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky et W. T. Vetterling, "Numerical recipes. The art of scientific computing", Cambridge University Press, Cambridge, 1986, Sec.12.7 (1986).
- [181] J. Brincker et G. W. Scherer, "Sol-gel science: the physics and chemistry of sol-gel processing", *Academic Press* (1990).

[182] Y. Lu, Y. Yin, Z.-Y. Li et Y. Xia, "Synthesis and self-assembly of Au@SiO2 coreshell colloids", *Nano Lett.* **2** (2002) 785.

- [183] Y. Lu, Y. Yin, B. T. Mayers et Y. Xia, "Modifying the surface properties of superparamagnetic iron oxide nanoparticles through a sol-gel approach", *Nano Lett.* **2** (2002) 183.
- [184] F. Galinier, F. Bertorelle et S. Féry-Forgues, "Spectrophotometric study of the incorporation of NBD probes in micelles: is a long alkyl chain on the fluorophore an advantage?", C. R. Acad. Sci. Paris 4 (2001) 941.
- [185] H. Nakanishi et H. Oikawa, "Reprecipitation method for organic nanocrystals", dans Single organic nanoparticles, édité par H. Masuhara, H. Nakanishi et K. Sasaki, Springer Verlag Berlin, Chap. 2 (2003) p. 17 31.
- [186] F. Bertorelle, D. Lavabre et S. Féry-Forgues, "Dendrimer-tuned formation of luminescent organic microcrystals", J. Am. Chem. Soc. 125 (2003) 6244.
- [187] F. Bertorelle, "Etude de microcristaux organiques luminescents. Préparation assistée par des dendrimères.", Thèse de Doctorat de l'Université Paul Sabatier Toulouse III (2003).
- [188] M. Abyan, F. Bertorelle et S. Féry-Forgues, "Use of linear polymers to control the preparation of luminescent organic microcrystals", Langmuir 21 (2005) 6030.
- [189] M. Abyan, "Effet des polymères sur la croissance et les propriétés optiques de microcristaux organiques luminescents", Thèse de Doctorat de l'Université Paul Sabatier Toulouse III (2006).
- [190] J. Deferne, "La théorie et l'emploi du microscope polarisant", http://www.kasuku.ch/pdf/Optique\_cristalline.pdf (2007).
- [191] A. Buosciolo, G. Pesce et A. Sasso, "New calibration method for position detector for simultaneous measurement of force constants and local viscosity in optical tweezers", Opt. Comm. 230 (2004) 357.
- [192] N. Malagnino, G. Pesce et A. Sasso, "Measurements of trapping efficiency and stiffness in optical tweezers", *Opt. Comm.* **214** (2002) 15.
- [193] A. Pralle, E.-L. Florin, E. H. K. Stelzer et J. K. H. Hörber, "Local viscosity probed by photonic force microscopy", *Appl. Phys.* A 66 (1998) S71.
- [194] S. C. Kuo, "A single assay for local heating by optical tweezers", Methods Cell Biol. 55 (1998) 43.
- [195] H. Felner, O. Müller et M. Schliwa, "Calibration of light forces in optical tweezers", Appl. Opt. 34 (1995) 977.
- [196] S. Saha, "4-amino derivatives of 7-nitro-2,1,3-benzoxadiazole: the effect of the amino moiety on the structure of fluorophores", Acta Cryst. C 58 (2002) o-174.

[197] R. C. Gauthier, M. Ashman et C. P. Grover, "Experimental conformation of the optical-trapping properties", Appl. Opt. 38 (1997) 4861.

- [198] P. Galajda et P. Ormos, "Rotation of microscopic propellers in laser tweezers", J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt. 4 (2002) S78.
- [199] A. D. Rowe, M. C. Leake, H. Morgan et R. M. Berry, "Rapid rotation of micron and submicron dielectric particles measured using optical tweezers", J. Mod. Opt. 50 (2003) 1539.
- [200] L. Malmqvist, H. M. Hertz, "Second-harmonic generation in optically trapped non-linear particles with pulsed lasers", Appl. Opt. 34 (1995) 3392.
- [201] B. Agate, C. T. A. Brown, W. Sibbett et K. Dholakia, "Femtosecond optical tweezers for in-situ control of two-photon fluorescence", Opt. Exp. 12 (2004) 3011.
- [202] W. Singer, H. Rubinsztein-Dunlop et U. Gibson, "Manipulation and growth of birefringent protein crystals in optical tweezers", Opt. Exp. 12 (2004) 6440.
- [203] P. A. Bancel, V. B. Cajipe et F. Rodier, "Manipulating crystals with light", J. Cryst. Growth 196 (1999) 685.
- [204] C. Veigel, M. L. Bartoo, D. C. S. White, J. C. Sparrow et J. E. Molloy, "The stiffness of rabbit skeletal actomyosin cross-bridges determined with an optical tweezers transducer", *Biophysical Journal* 75 (1998) 1424.
- [205] C. Veigel, J. E. Molloy, S. Schmitz et J. Kendrick-Jones, "Load-dependent kinetics of force production by smooth muscle myosin measured with optical tweezers", Nature Cell Biology 5 (2003) 980.
- [206] C. Veigel, S. Schmitz, Fei Wang et J. R. Sellers, "Load-dependent kinetics of myosin-V can explain its high processivity", Nature Cell Biology 7 (2005) 861.

### Annexe A

## Calcul de la force optique maximale

Dans cet appendice, nous exposons le calcul de la force optique maximale pouvant résulter d'un transfert total de la quantité de mouvement de la lumière à un objet matériel à une puissance donnée. Ce faisant, nous rappelons les idées simples qui conduisirent Ashkin à développer la première expérience de piégeage optique.

Considérons un faisceau incident sur un miroir totalement réfléchissant. La quantité de mouvement (ou impulsion) p associée à un photon de longueur d'onde  $\lambda$  est donnée par l'expression :

$$p = \frac{h\nu}{c} = \frac{h}{\lambda} \tag{A.1}$$

C'est l'expresion de l'impulsion du photon telle qu'établie par Louis de Broglie en 1924 dans sa fameuse thèse de doctorat qui lui vaudra le prix Nobel de Physique en 1929.

Pour une puissance incidente P, le nombre de photons par seconde voyageant dans le faisceau s'écrit :

$$N = \frac{P}{h\nu} \tag{A.2}$$

Ce nombre est préservé après réflexion sur le miroir totalement réfléchissant. Tous les photons étant réfléchis, alors la variation totale et maximale du moment de la lumière par seconde sera calculé par :

$$2(\frac{P}{h\nu})(\frac{h\nu}{c}) = \frac{2P}{c} \tag{A.3}$$

Le facteur 2 apparaît pour tenir compte que l'impulsion p est une quantité vectorielle et que lors de la réflexion sur le miroir, le changement d'impulsion est :

$$\Delta p = p - (-p) = 2p \tag{A.4}$$

A cause de la loi de conservation de l'impulsion, ceci implique que le miroir acquiert une quantité de mouvement égale et dirigée dans la direction de propagation de la lumière. La force correspondante associée à la variation de la quantité de mouvement se calcule comme la dérivée par rapport au temps de l'impulsion. Ici, comme les quantités sont calculées par seconde, la force de pression de radiation est donc simplement :

$$F_{miroir} = \frac{2P}{c} \tag{A.5}$$

Pour une puissance de 1 W= 1 J/s transportée par le faisceau, on calcule que :

$$F_{miroir} = \frac{2}{3} \times 10^{-8} N = 7 \, nanoNewton \tag{A.6}$$

Cette valeur représente la force maximale que l'on puisse extraire de la lumière pour un faisceau de 1 W. Elle semble tout à fait négligeable, mais elle apparaît énorme si on la compare au poids d'une particule de taille micrométrique, par exemple une sphère de verre de diamètre d=1  $\mu m$  et de masse volumique  $\rho=2,5$   $\frac{g}{cm^3}$ . En effet, une telle particule a une masse et un poids égal à :

$$Masse = \frac{1}{6}\pi d^3 \times \rho = 1, 3 \times 10^{-15} \, kg = 1, 3 \, picogramme$$
 (A.7)

$$Poids = Masse \times 9,81 \frac{m}{s^2} = 12,8 \times 10^{-15} N = 12,8 femtoNewton \tag{A.8} \label{eq:A.8}$$

Ainsi, si l'on calcule l'accélération maximale qui pourrait être produite par la lumiére sur une telle particule, supposée totalement réfléchissante, on obtient :

$$Acc\'{e}l\'{e}ration = \frac{Force}{Masse} = \frac{7 \times 10^{-9}}{1,3 \times 10^{-15}} = 5,4 \times 10^{6} \frac{m}{s^{2}}$$
 (A.9)

Comparée à l'accélération g de la pesanteur, soit 9,81  $\frac{m}{s^2}$ , cette accélération représente :

$$Acc\'el\'eration = 5 \times 10^5 g$$
 (A.10)

Pour un faisceau focalisé et selon la taille ou la densité de la particule, cette accélération induite par la lumière pourra donc être comprise entre 500000 et un million de fois l'accélération due à la gravité terrestre. C'est l'évaluation d'un tel ordre de grandeur qui convainquit Ashkin que la manipulation de micro-objets par la lumière devait être aisément possible.

### Annexe B

# Rappels sur les propriétés des cristaux biréfringents

Dans cet appendice, nous introduisons les termes et les éléments qui permettent de décrire les propriétés des cristaux biréfringents.

Rappelons qu'une onde plane monochromatique se propageant au travers d'un milieu diélectrique homogène est décrite par son vecteur d'onde et par les vecteurs du champ électrique  $\vec{E}$  et de l'induction électrique  $\vec{D}$ . Dans une base orthogonale, la relation entre ces vecteurs est donnée par :

$$D_i = \sum_{j=1}^3 \epsilon_{ij} E_{ij} \tag{B.1}$$

où les indices i, j = 1, 2, 3 font références aux composantes spatiales x, y, z respectivement, et où  $\epsilon_{ij}$  sont les composantes du tenseur  $\tilde{\epsilon}$  de la permitivité diélectrique.

Comme exemple, considérons la situation où le vecteur du champ électrique E vibre dans la direction x, on a ainsi :

$$E = \{E_1, 0, 0\} \tag{B.2}$$

et les composantes de D sont alors données par :

$$D = \{\epsilon_{11}E_1, \epsilon_{21}E_1, \epsilon_{31}E_1\}$$
(B.3)

Ainsi, dans cette expression, le deuxième terme  $\epsilon_{21}E_1$  représente la composante de D dans la direction y due au champ éléctrique orienté dans la direction x. Si le tenseur est symétrique, ce qui veut dire que les composantes  $\epsilon_{ij}=\epsilon_{ji}$ , il est alors possible d'écrire ce tenseur du second ordre comme une matrice diagonale, ce qui réduit donc le nombre de composantes du tenseur de permitivité diélectrique à seulement 6.

Considérons que  $\epsilon_{11}=\epsilon_x,\,\epsilon_{22}=\epsilon_y,\,\epsilon_{33}=\epsilon_z.$  Les permitivités  $\epsilon_x,\,\epsilon_y,\,\epsilon_z$  correspondent aux

## 210ANNEXE B. RAPPELS SUR LES PROPRIÉTÉS DES CRISTAUX BIRÉFRINGENTS

indices de réfraction:

$$n_x = \left(\frac{\epsilon_x}{\epsilon_0}\right)^{1/2} \quad n_y = \left(\frac{\epsilon_y}{\epsilon_0}\right)^{1/2} \quad n_z = \left(\frac{\epsilon_z}{\epsilon_0}\right)^{1/2}$$
 (B.4)

La représentation géométrique du tenseur diélectrique de second ordre est une surface quadratique (un ellipsoïde) définie par :

$$\sum_{ij} = \epsilon_{ij} x_i x_j = 1 \tag{B.5}$$

Dans le système de coordonnées principal,  $\epsilon_{ij}$  est diagonal et la surface s'écrit selon l'équation :

$$\epsilon_{11}x_1^2 + \epsilon_{22}x_2^2 + \epsilon_{33}x_3^2 = 1 \tag{B.6}$$

Pour représenter la surface en terme d'indices de réfraction, considérons le tenseur de perméabilité électrique qui est relié au tenseur de permitivité diélectrique de la façon suivante :

$$\eta = \epsilon_0 \epsilon^{-1} \tag{B.7}$$

En substituant les expressions de  $\eta$  (Equation B.7) et celle des indices de réfraction (Equation B.4) dans l'équation B.6, on obtient la représentation géométrique du tenseur de permitivité diélectrique :

$$\frac{x_1^2}{n_1^2} + \frac{x_2^2}{n_2^2} + \frac{x_3^2}{n_3^2} = 1 \tag{B.8}$$

Cette surface est connue comme celle de l'ellipsoïde des indices.

## Annexe C

## Schémas des détecteurs de position

Dans cet appendice, nous donnons quelques précisions et détails techniques relatifs aux détecteurs de position utilisés dans nos expériences. Ils sont de deux types comme montré dans la figure C.1.

#### Détecteur à effet latéral

Une photodiode à effet latéral est composée de deux couches de silicium, l'une dopée P en surface et l'autre dopée N. Ces couches forment une jonction PN verticale qui présente une résistance très homogène latéralement. Quatre électrodes sont formées par déposition de métal sur les couches implantées. La jonction PN est sensible à la lumière et génère un courant sous l'incidence de photons si la jonction est correctement polarisée en inverse ("reverse biased" en anglais). Le courant traverse les couches implantées en directions des électrodes. Ces courants sont inversement proportionnels à la distance entre le point d'impact de la lumière incidente et les électrodes. On obtient ainsi une indication sur la

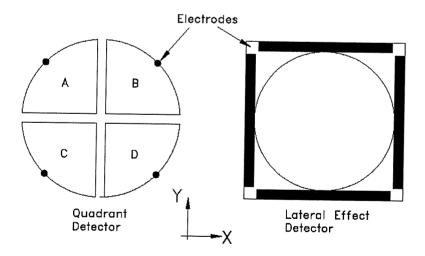


Fig. C.1: Schémas comparatifs entre un détecteur à quatre quadrants à gauche et un détecteur à effet latéral à droite.

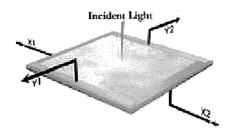


Fig. C.2: Schéma d'un détecteur de position à effet latéral montrant le branchement des électrodes.

position du "centre de gravité" de la lumière incidente.

Un PSD à effet latéral à deux dimensions est capable de détecter un spot de lumière en déplacement sur sa surface. Le courant photoélectrique généré par la lumière incidente circule à travers le dispositif et peut être vu comme deux courants d'entrée  $X_1$  et  $X_2$  et deux courants de sortie  $Y_1$  et  $Y_2$  (Figure C.2). La position de la tache de lumière est déterminée par la relation suivante entre les courants :

$$Position_X = \frac{L_x}{2} \frac{X_1 - X_2}{X_1 + X_2} \quad Position_Y = \frac{L_y}{2} \frac{Y_1 - Y_2}{Y_1 + Y_2}$$
 (C.1)

où  $L_X$  et  $L_Y$  sont les dimensions de la surface sensible du PSD selon les dimensions X et Y respectivement. Avec ces équations, l'intensité de la lumière incidente n'affecte pas le calcul de la position. La séparation selon les deux dimensions assure une excellente linéarité au dispositif.

#### Détecteur à 4-quadrants

Le détecteur à quatre quadrants est constitué d'un disque uniforme de silicium partagé en quatre secteurs par deux entailles perpendiculaires à travers sa surface. Pour des performance optimales et une excellente résolution, la dimension de la tache lumineuse doit être la plus petite possible.

Sur le schéma de la figure C.3, A, B, C et D sont les quatre quadrants respectivement et R est le rayon du faisceau incident sur le détecteur. La position du faisceau est calculée en utilisant les formules suivantes :

$$Position_X = \frac{(B+D) - (A+C)}{A+B+C+D} \quad Position_Y = \frac{(A+B) - (C+D)}{A+B+C+D}$$
 (C.2)

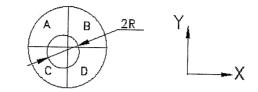
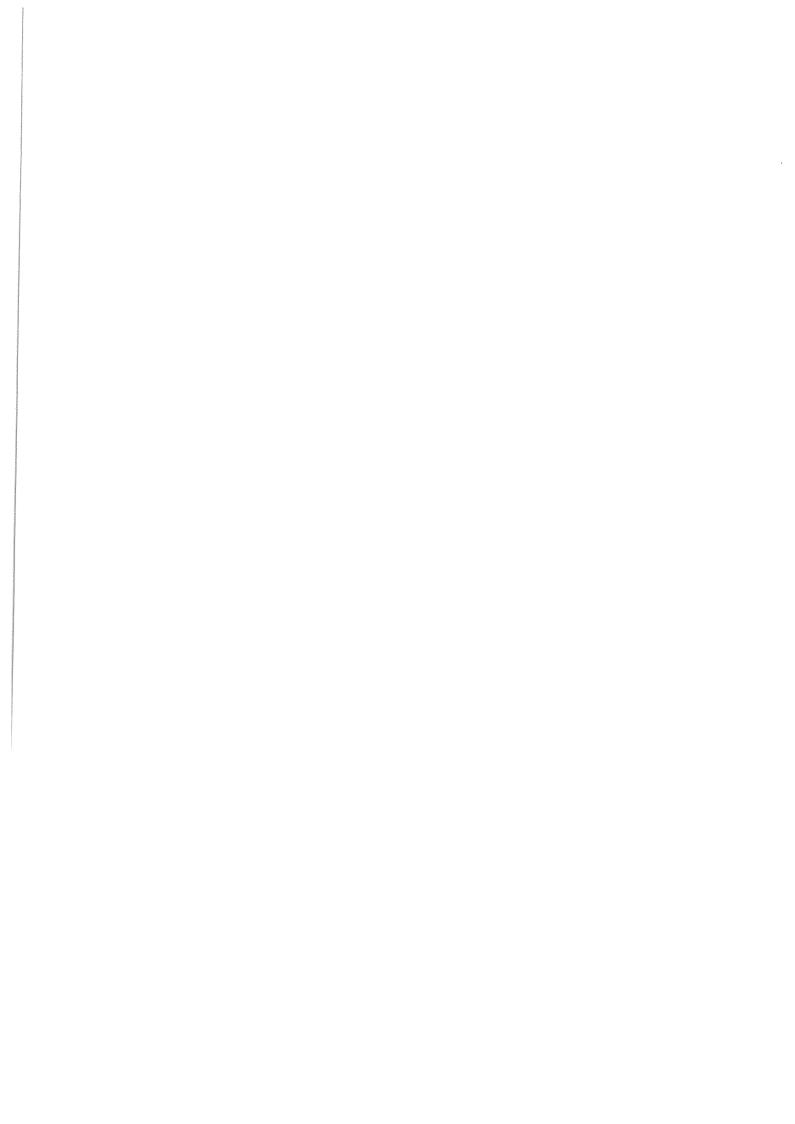


Fig. C.3: Schéma d'un détecteur à quatre quadrants où l'on a représenté la position d'un spot laser de rayon R.

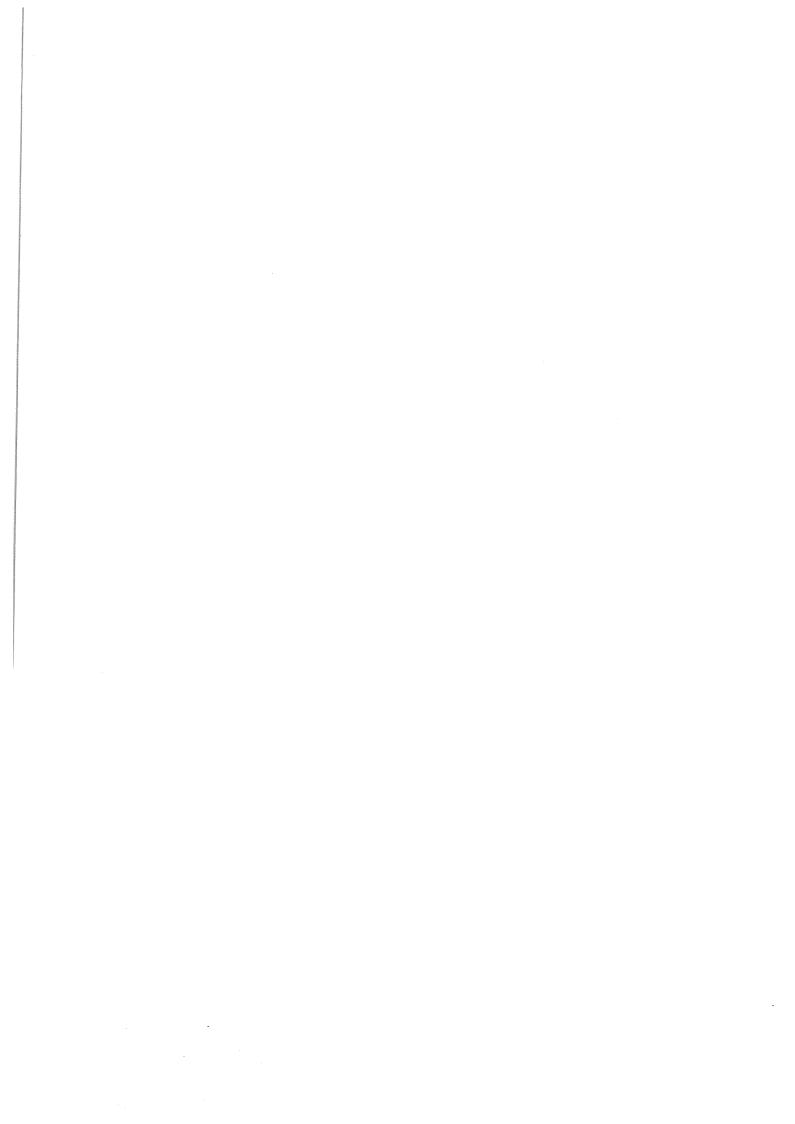
où A+B+C+D=P est la puissance totale reçue. Les valeurs reflétant la position est affichée en sortie comme un nombre fractionnaire ou un pourcentage représentant la fraction relative du déplacement selon les directions X et Y respectivement.

La résolution spatiale d'un tel détecteur peut être très élevée et une résolution sub-micronique peut être atteinte avec des faisceaux de petite taille. Par exemple, un faisceau incident ayant un rayon de tache de 20  $\mu m$  conduira à une sensibilité de détection de mouvements meilleure que  $0.1~\mu m$ .









## Résumé

Nous avons construit une expérience de pinces optiques basée sur l'utilisation d'un microscope optique inversé. Deux classes de micro objets ont été étudiées : 1 - Des particules colloïdales sphériques soit homogènes tels des colloïdes de silice pure ou des billes commerciales de latex, soit inhomogènes tels des particules composites constituées d'un cœur métallique d'or entouré d'une coquille de silice. 2 - Des micro-monocristaux d'une molécule organique fluorescente présentant une forme non sphérique, parallélépipédique. Notre étude a démontré un piégeage efficace même sur les plus petites particules contenant un noyau d'or. Pour les nanoparticules hybrides d'or-silice, la constante élastique du piège optique expérimentalement mesurée est plus forte que pour les nanoparticules de silice avec un diamètre semblable. Les microcristaux organiques s'orientent de sorte que leur axe long soit dans la direction axiale du faisceau de piégeage, l'axe court suit la direction de la polarisation linéaire du faisceau. En polarisation circulaire ou elliptique, les cristaux se mettent spontanément en rotation avec des vitesses de rotation tout à fait élevées, jusqu'à 500 tours par seconde. C'est la première fois qu'un tel résultat est reporté pour des particules de la taille de nos cristaux. Un autre résultat surprenant est que lorsque la puissance incidente augmente, la vitesse de rotation augmente aussi comme attendu mais après passage par un maximum, alors que la puissance continue de croître, la vitesse de rotation diminue jusqu'à arrêt complet de la rotation, et cette évolution n'est pas réversible!

### **Abstract**

We built an experiment of optical tweezers based on the use of an inverted optical microscope. Two classes of micro objects were studied: 1 - spherical colloidal particles, either homogeneous such as colloids of pure silica or commercial latex balls, or inhomogenous such as composite particles made up of a metal gold core embedded in a silica shell. 2 - micro-single crystals of a fluorescent organic molecule presenting a nonspherical, parallelepipedic form. Our study showed an effective trapping even on the smallest particles containing a gold core. For the hybrid gold-silica nanoparticules, the elastic constant of the optical trap measured in experiments is stronger than for the silica nanoparticules with a similar diameter. This result is in agreement with a simple model based on the increase in polarizability of the particle due to the presence of the gold core. The influence of the polarization of the light was studied and we discussed the choice of the detector of position. The organic microcrystals are directed so that their long axis is in the axial direction of the trapping beam, the short axis follows the direction of the linear polarization of the beam. In circular or elliptic polarization, the crystals are put spontaneously in rotation with high speed up to 500 turns per second. It is the first time that such a result is deferred for particles of the size of our crystals. Another surprising result is that when the incident power increases, the rotation speed also increases as expected but after the passage by a maximum, whereas the power continues growing, the rotation speed decreases until complete stop of rotation, and this evolution is not reversible!

## Mots clés

- 1 Pinces optiques
- 2 Billes latex
- 3 Billes composites or-silice
- 4 Calibration forces

- 5 microcristaux
- 6 Orientation cristaux
- 7 Rotation cristaux
- 8 Détecteurs de position