



HAL
open science

Développement et application d'une pince optique à fibres nano-structurées

Jean-Baptiste Decombe

► **To cite this version:**

Jean-Baptiste Decombe. Développement et application d'une pince optique à fibres nano-structurées. Optique [physics.optics]. Université Grenoble Alpes, 2015. Français. NNT : 2015GREAY035 . tel-01254352

HAL Id: tel-01254352

<https://theses.hal.science/tel-01254352>

Submitted on 12 Jan 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Jean-Baptiste Decombe

Thèse dirigée par **Jochen Fick**
et codirigée par **Géraldine Dantelle**

préparée à l'**Institut Néel CNRS**
dans l'**Ecole Doctorale de Physique de Grenoble**

Développement et application d'une pince optique à fibres nano-structurées

Thèse soutenue publiquement le **20 Octobre 2015**,
devant le jury composé de :

Dr. Frédérique de Fornel

Directrice de Recherche, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne,
Dijon, Rapporteur

Dr. Thierry Grosjean

Chargé de Recherche, Institut FEMTO-ST, Besançon, Rapporteur

Pr. Eric Lacot

Professeur, Université Joseph Fourier, Grenoble, Président du jury

Pr. Olav Gaute Hellesø

Professeur, Université de Tromsø, Norvège, Examineur

Dr. Géraldine Dantelle

Chargée de Recherche, Institut Néel, Grenoble, Co-Directrice de thèse

Dr. Jochen Fick

Chargé de Recherche, Institut Néel, Grenoble, Directeur de thèse



Remerciements

J'aimerais remercier ici toutes les personnes qui m'ont permis de réaliser trois très belles années de thèse à l'Institut Néel et de mener ce projet à son terme.

Je remercie en premier lieu Alain Schuhl et Hervé Courtois, directeurs successifs de l'Institut Néel de m'avoir accueilli au sein du laboratoire.

Je remercie également les membres de mon jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux. Merci à Eric Lacot pour avoir accepté de présider ce jury, à Frédérique de Fornel et Thierry Grosjean rapporteurs de ce manuscrit, pour leurs lectures attentives, leurs remarques et critiques, ainsi qu'à Olav Gaute Hellesø pour sa participation et les discussions intéressantes que nous avons pu échanger.

Je tiens tout particulièrement à exprimer ma gratitude envers mes deux directeurs de thèse Géraldine Dantelle et Jochen Fick. Merci à Géraldine pour sa bonne humeur, son enthousiasme et ses conseils avisés notamment concernant la chimie. J'ai adoré manipuler avec toi. Je remercie Jochen pour sa disponibilité au quotidien, les discussions scientifiques innombrables qui m'ont permis d'y voir plus clair et parfois de me remettre dans le droit chemin. Vous m'avez été d'un énorme soutien.

Le fait que ces travaux soient intégrés dans un projet national de recherche a été très enrichissant. Cela m'a permis de rencontrer de nombreuses personnes extérieures à l'Institut Néel dans des domaines différents, à travers des collaborations aussi riches scientifiquement qu'humainement.

Au cours de ma thèse, j'ai ainsi eu l'opportunité d'effectuer plusieurs séjours au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (PMC) à Palaiseau. Je remercie très chaleureusement Thierry Gacoin de m'avoir aussi bien accueilli et intégré dans son équipe, de sa disponibilité malgré son emploi du temps chargé, de sa bonne humeur et des nombreuses idées qui m'ont inspiré (le bassin entre deux joints coupés, il fallait y penser). Merci à Anne-Marie pour l'aspect administratif et pratique. J'en profite également pour remercier les membres de l'équipe "chimie du solide", dont l'ambiance y est formidable. Merci en particulier à Mélanie, Isabelle, Godefroy et aux

doctorants (pour la plupart docteurs aujourd'hui) Lucie, Nicolas, Sébastien, Quentin, Barbara et Maud.

Ces travaux ont également été en interaction avec le laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne à Dijon. Je remercie Gérard Colas des Francs et Francisco Valdivia-Valero pour leur disponibilité et les discussions théoriques que nous avons pu échanger.

J'ai aussi eu la chance de collaborer avec d'autres laboratoires tel que l'Université de Tromsø (Norvège) où je remercie Olav Gaute Hellesø pour son accueil au sein de son équipe et Jean-Claude Tinguely pour la découverte de cette ville et ces paysages avec de magnifiques fjords. Un grand merci également à Samir K. Mondal du laboratoire "Central Scientific Instruments Organization" à Chandigarh (Inde), pour sa collaboration dans le projet avec les pointes à faisceau de Bessel. Merci à Benoît Cluzel ainsi qu'à Christophe Pin du laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne pour les discussions que nous avons pu échanger à propos du piégeage optique.

Au sein de l'Institut Néel j'adresse mes remerciements à l'ensemble des membres de l'équipe Champ Proche, ensuite devenu Nano-Optique et Forces. Merci à Serge Huant, Aurélien Drezet, Guillaume Bachelier et Herman Sellier pour leurs discussions scientifiques et extra-scientifiques mais aussi pour leurs bonnes humeurs partagées pendant les déjeuners. Je tiens à remercier particulièrement Yannick Sonnefraud qui en moins d'un an m'aura beaucoup apporté. Tu nous manques Yannick.

Merci aussi aux doctorants (passés, présents et futurs) Martin, Logi, Quambo, Simon, Arnaud, Boris, Maylis, Nicolas, Aline, Kévin et Johanna. Je tiens évidemment à remercier les stagiaires avec lesquels j'ai eu le plaisir de travailler au cours de ces trois années : Nicolas, Alejandro, Guilhem, Mégane, Redha et Rui.

Je souhaite également remercier l'ensemble des pôles et services, administratifs ou techniques de l'Institut Néel. Merci à Sabine, Florence, Mathilde et Aurélie de l'administration du département Nano, pour leur disponibilité et leur réactivité. Merci également à Patrick et Julien du service informatique, Cécile du service reprographie, Isabelle, Fabrice et Nicolas du service achat-magasin. Je remercie Laurent Del-Rey pour sa disponibilité dans la conception des pièces mécaniques, Sébastien Pairis pour la microscopie électronique et David Jegouso du pôle optique. Un grand merci à l'ensemble du pôle Nanofab et en particulier à Jean-François Motte pour la réalisation des pointes optiques mais aussi pour ses conseils avisés, sa bonne humeur et son superbe match en tant que gardien de but (ah, si tu l'avais marqué ce péno...).

J'aimerais remercier tout particulièrement Katrin, qui est arrivée le même jour que moi et qui depuis, est devenue une véritable amie (et collègue de bureau tout à fait par hasard). Merci à toi pour les moments passés dans mais surtout hors-laboratoire, tu m'as été d'un très grand soutien.

Heureusement qu'ils sont là pour me changer les idées, je veux bien sûr parler de mes indispensables amis dispersés un peu partout en France. Je souhaite commencer par remercier Alex, sur qui je pourrai toujours compter, merci "brocoup". Merci également à Manu, un autre Troyen auquel je tiens beaucoup. Merci aussi au trio magique, Fab, Flo et Toto avec qui nous avons déjà fait de beaux voyages. J'espère que ça va continuer, vous me manquez les gars!

Je remercie spécialement Léa pour son soutien, sa bonne humeur, son sourire malgré des moments difficiles, et bien plus encore.

Enfin je terminerai par remercier du fond du cœur ma famille, qui est essentielle pour moi et qui m'a permis de devenir ce que je suis aujourd'hui. Merci à mes sœurs Marie et Léa ainsi qu'à mon frère Antoine. Je ne remercierai jamais assez mes parents pour leur aide, soutien et encouragements sans faille. Enfin un grand merci à Marie-Claire et à Grand-mère, je n'oublierai jamais votre visite à Grenoble.

"Elle entendit Sandro qui disait : *il y a là des prunes transparentes et de l'ombre en cascade.*"

Muriel Barbery
La vie des elfes (2015)

*À Mamie et Papi,
à Grand-Père,
à Emmanuel,
à Yannick*

Table des matières

Remerciements	iii
Table des figures	xiii
Liste des tableaux	xvii
Introduction générale	1
1 Fondamentaux et état de l'art	5
1.1 Principe du piégeage optique	6
1.1.1 Introduction	6
1.1.2 Théorie, forces optiques	8
1.1.3 Comment réaliser un piège optique efficace?	13
1.2 Pincés optiques à focalisation de faisceau	15
1.2.1 Pincés optiques holographiques	15
1.2.2 Vortex optique	16
1.2.3 Applications	17
1.3 Pincés optiques en champ proche	19
1.3.1 Guide d'onde	21
1.3.2 Nanostructure plasmonique	22
1.3.3 Cristal photonique	26
1.4 Pincés optiques fibrées en champ lointain	27
1.4.1 Piégeage optique avec une fibre	27
1.4.2 Piégeage avec deux fibres	30
1.4.3 Notre approche	32
1.5 Conclusion	33
2 Dispositif expérimental	35
2.1 Pince optique	36
2.1.1 Positionnement des fibres	36

2.1.2	Injection et contrôle optique	38
2.1.3	Observation du piégeage	40
2.1.4	Particules étudiées	45
2.1.5	Environnement fluïdique	45
2.1.6	Spectroscopie de luminescence	48
2.2	Fibres optiques gravées en pointe	49
2.2.1	Fabrication	49
2.2.2	Caractérisation	52
2.3	Caractérisation du piégeage	56
2.3.1	Suivi des particules piégées	56
2.3.2	Statistique de Boltzmann	57
2.3.3	Étude fréquentielle : densité spectrale de puissance	60
2.3.4	Autocorrélation	62
2.3.5	Mesure du signal retour U_R	63
3	Piégeage de microparticules	67
3.1	Piégeage optique avec deux pointes	68
3.1.1	Description	68
3.1.2	Efficacité de piégeage, constante de raideur	69
3.1.3	Étude du signal retour U_R	74
3.2	Mesures complémentaires des forces optiques	77
3.2.1	Piégeage optique avec une pointe	77
3.2.2	Modulation en intensité	79
3.2.3	Système micro-fluïdique	82
3.3	Piégeage avec un faisceau de Bessel	84
3.3.1	Faisceau de Bessel : description	84
3.3.2	Fabrication et caractérisation des nano-antennes	85
3.3.3	Piégeage de microparticules	88
3.4	Conclusion	92
4	Piégeage de nanoparticules	93
4.1	Élaboration des particules de YAG :Ce ³⁺	94
4.1.1	Synthèse	95
4.1.2	Caractérisation	99
4.2	Piégeage des particules de YAG :Ce ³⁺	104
4.2.1	Particules de 300 nm	104
4.2.2	Particules de 60 nm	111
4.3	Influence du volume sur les forces optiques	114
4.4	Simulations	117
4.4.1	Modèle avec une fibre	117
4.4.2	Modèle avec deux fibres	119

4.5 Nanobâtonnets de $\text{NaYF}_4 : \text{Er/Yb/Gd}$	120
4.5.1 Synthèse et caractérisation	120
4.5.2 Piégeage et spectroscopie de luminescence	122
4.6 Conclusion	124
5 Champ proche : pointes métallisées	127
5.1 Introduction	128
5.2 Pointes métallisées	129
5.2.1 Types de pointes	129
5.2.2 Fabrication	129
5.2.3 Caractérisation	131
5.3 Résultats en champ proche	133
5.3.1 Cavité inter-fibres	133
5.3.2 Couplage en champ proche	135
5.4 Conclusion	143
Conclusions et perspectives	145
Bibliographie	149
A Synthèse de particules de $\text{YAG} : \text{Ce}^{3+}$ par réaction solide	159
Publications	163
Résumé (français)	165
Abstract (english)	167

Table des figures

1.1	Pince optique d'A. Ashkin	7
1.2	Facteur d'efficacité en fonction du volume de la particule	8
1.3	Représentation des forces par l'approche de l'optique géométrique . . .	13
1.4	Schéma du principe d'une pince optique classique	14
1.5	Principe de la pince optique holographique	15
1.6	Motifs de particules piégées par une pince optique holographique . . .	16
1.7	Vortex optique permettant de tourner des microparticules	16
1.8	Micro-valve fabriquée et contrôlée par une pince optique	17
1.9	Étirement d'un globule rouge avec une pince optique	18
1.10	Schéma de l'étude du mouvement de l'ARN polymérase	19
1.11	Vue d'ensemble de différentes configurations de piégeage utilisant le champ évanescent	20
1.12	Principe de la manipulation de particules sur un guide d'onde	21
1.13	Piégeage stable de micro-particules avec un guide d'onde en forme de boucle	22
1.14	Piégeage plasmonique SIBA utilisant une nano-ouverture dans un film métallique	23
1.15	Piégeage plasmonique avec une paire de nano-ouvertures	24
1.16	Pince optique avec une fibre SNOM en forme de nœud papillon	25
1.17	Piégeage dans une cavité à cristal photonique	26
1.18	Piégeage avec une fibre optique dont le bout est gravé en forme de cône creusé	28
1.19	Piégeage et contrôle de la position d'une cellule avec une fibre optique effilée	29
1.20	Pince optique à une fibre contenant une lentille à plasmon	29
1.21	Piégeage et manipulation avec une paire de fibres effilées	30
1.22	Pince optique à deux fibres avec des pointes conçues par photopolymé- risation	31
1.23	Piégeage et orientation d'un bâtonnet avec deux fibres effilées	32

1.24	Principe de notre pince optique fibrée	33
2.1	Cliché des pointes montées sur les moteurs	36
2.2	Contrôle de la distance entre les fibres	37
2.3	Montage expérimental du banc optique	39
2.4	Définition du signal retour U_R	40
2.5	Photographie du microscope	41
2.6	Microscope optique en champ clair (ou sombre)	43
2.7	Montage expérimental de l'excitation des particules luminescentes	44
2.8	Cliché de notre système statique en milieu liquide	46
2.9	Système en PDMS	47
2.10	Montage expérimental modifié avec le spectromètre	49
2.11	Images MEB de pointes éfilées	50
2.12	Principe de la gravure chimique "tube etching"	51
2.13	Mesures angulaires de l'émission des pointes	52
2.14	Image MEB d'une pointe optique avec des particules d'1 μm	53
2.15	Principe des mesures en transmission	54
2.16	Émission en transmission en fonction de la distance entre les pointes	55
2.17	Suivi de la position d'une particule piégée	58
2.18	Distribution statistique de la position d'une particule piégée	59
2.19	Spectre fréquentielle	61
2.20	Fonction d'autocorrélation	63
2.21	Mesure du signal retour réfléchi sans particule et avec une particule piégée	64
3.1	Clichés du piège d'1 et de 2 microparticules entre deux pointes	69
3.2	Trajectoires d'une microparticule piégée pour plusieurs puissances et distances.	70
3.3	Distribution statistique de la position d'une microparticule, pour différentes puissances et distances	70
3.4	Potentiels de piégeage d'une microparticule, pour différentes puissances et distances	71
3.5	Spectres fréquentiels de la position d'une microparticule avec différentes puissances et distances	72
3.6	Autocorrélation de la position d'une microparticule avec différentes puissances et distances	72
3.7	Raideur de piégeage calculée avec les 3 méthodes	73
3.8	Raideur calculée en fonction de la distance entre les pointes	74
3.9	Mesures du signal retour	76
3.10	Série d'images du piège d'une microparticule avec une seule pointe	78
3.11	Vitesse et force optique d'une particule éjectée	79

3.12	Fluctuation temporelle de la position d'une microparticule avec une modulation en intensité	80
3.13	Trajectoire axiale d'une particule pour des modulations de différentes amplitudes et fréquences	80
3.14	Trajectoire axiale d'une microparticule avec une modulation en intensité et forces optiques	81
3.15	Force de Stokes mesurée avec l'instauration d'un flux	83
3.16	Position transverse d'une particule avec l'application d'un flux qui augmente linéairement	83
3.17	Principe du faisceau de Bessel	85
3.18	Principe de la gravure pour obtenir des nano-antennes	86
3.19	Image MEB d'une nano-antenne et son émission	86
3.20	Caractérisation des propriétés d'émission d'une nano-antenne	87
3.21	Forces optiques mesurées à partir de l'éjection d'une particule par une nano-antenne	88
3.22	Piégeage de 1 à 3 particules entre deux nano-antennes ($d = 32,5 \mu\text{m}$)	89
3.23	Tracés de la position des 3 particules et constantes de raideur	90
3.24	Piégeage de 2 à 5 particules entre deux nano-antennes ($d = 65 \mu\text{m}$)	91
4.1	Image MEB de particules de YAG :Ce ³⁺ synthétisées par réaction solide à haute température	95
4.2	Schéma de la synthèse glycothermale des particules de YAG :Ce ³⁺	96
4.3	Étapes du recuit protégé dans une matrice de silice	98
4.4	Diagramme de DRX de nanoparticules de YAG :Ce ³⁺	99
4.5	Images MEB de nanoparticules de YAG :Ce ³⁺	100
4.6	Images MET de nanoparticules de YAG :Ce ³⁺	101
4.7	Distribution statistique en taille des particules de YAG :Ce ³⁺	102
4.8	Spectres d'absorption et d'émission d'une solution de particules de YAG :Ce ³⁺	103
4.9	Photostabilité des nanoparticules de YAG :Ce ³⁺	104
4.10	Image optique de particules luminescentes de YAG :Ce ³⁺ piégées d'environ 300 nm de diamètre	105
4.11	Distribution statistique de la position d'une particule de YAG :Ce ³⁺ piégée de 300 nm de diamètre	106
4.12	Distribution statistique, analyse fréquentielle de la position et du signal retour d'une particule de YAG 300	107
4.13	Raideurs calculées selon trois méthodes	108
4.14	Mise en évidence des franges d'interférences	109
4.15	Analyse fréquentielle du signal retour U_R et raideur du piège avec une particule de YAG :Ce ³⁺ de 60 nm de diamètre.	111

4.16	Trajectoire et distribution statistiques de la position d'une particule de YAG 60	113
4.17	Images de particules luminescentes en polystyrène de 500, 390 et 200 nm piégées entre les pointes	114
4.18	Trajectoire et distribution statistiques en position des particules luminescentes en polystyrène	115
4.19	Raideur en fonction du volume de la particule piégée	116
4.20	Paramètres et champ électrique calculé le long d'une pointe optique.	117
4.21	Cartes de l'énergie potentielle et du champ électrique calculés sur une particule de YAG 300	118
4.22	Cartes du champ électrique calculé avec 2 fibres en face à face	119
4.23	Images MEB de nanobâtonnets de NaYF ₄	121
4.24	Propriétés de luminescence des nanobâtonnets de NaYF ₄	122
4.25	Images du piégeage de bâtonnets de NaYF ₄	122
4.26	Spectre de luminescence d'un bâtonnet de NaYF ₄ piégé optiquement	123
5.1	Principe de métallisation par évaporation	130
5.2	Images MEB de pointes métallisées avant et après FIB	131
5.3	Spectre angulaire d'émission d'une pointe POPF	133
5.4	Cartes en transmission et en réflexion de pointes SNOM	134
5.5	Rayon des franges d'interférences en fonction de la distance entre les pointes	135
5.6	Image MEB d'une paire de pointes métallisées POPF	135
5.7	Cartes en transmission en champ lointain et champ proche	136
5.8	Taille et excentricité du faisceau elliptique transmis	137
5.9	Image MEB d'une seconde paire de pointes métallisées POPF	138
5.10	Série de cartes en transmission avec différentes distances	139
5.11	Série de cartes en transmission avec différentes orientations de la polarisation	140
5.12	Profil horizontal de l'intensité transmise mesurée et calculée	141
A.1	Image MEB de particules de YAG :Ce ³⁺ synthétisées par réaction solide à haute température.	160
A.2	DRX de synthèses avec des temps de recuit différents	160
A.3	Spectres d'absorption et d'émission des poudres de YAG :Ce ³⁺	161

Liste des tableaux

1.1 Comparaison de F_{grad} et F_{diff} pour des particules de différentes tailles	12
1.2 Exemples de pinces optiques plasmoniques.	22
3.1 Raideurs de piégeage (en $\text{pN } \mu\text{m}^{-1}$) calculées avec les 3 méthodes pour différentes puissances ($d = 11,5 \mu\text{m}$).	75
3.2 Raideurs (en $\text{pN } \mu\text{m}^{-1}$) pour plusieurs distances ($P = 13,3 \text{ mW}$). . . .	75

Introduction générale

Les pinces optiques permettent de piéger et de manipuler des objets avec précision sans aucun contact mécanique avec la seule présence de la lumière. Depuis son introduction en 1986 par A. Ashkin [1], le piégeage optique est devenu un domaine de recherche en constante évolution. Son caractère non-invasif et non-destructif en fait un outil particulièrement adapté pour la manipulation d'espèces biologiques. De ce fait, il trouve un champ d'application important dans des domaines tels que la biologie, la physique de la matière molle et la médecine. Le champ d'investigation de cette technique est particulièrement vaste puisqu'il s'étend de l'échelle atomique avec le refroidissement d'atomes à l'échelle micrométrique et le piégeage de cellules.

Cette technique exploite les forces optiques liées à l'interaction entre un champ électromagnétique et de la matière. Ces forces peuvent être vues comme la somme de deux forces : la force de gradient et la force de diffusion. La première attire la particule vers les zones à forte densité de champ alors que la seconde pousse la particule dans le sens de la propagation de la lumière. Ainsi, un piège optique stable nécessite que la force de gradient surpasse localement la force de diffusion.

La pince optique conventionnelle utilise un faisceau laser fortement focalisé par un objectif de microscope à grande ouverture numérique, permettant d'augmenter la force de gradient. Dans ce cas, le piégeage est effectif à proximité du point focal de l'objectif. Cette technique est aujourd'hui bien maîtrisée et commercialisée. Toutefois, la diffraction de la lumière limite la résolution spatiale du faisceau focalisé et donc la force de gradient. Par conséquent, le piégeage de particules de taille nanométrique devient délicat puisque les forces optiques sont proportionnelles au volume de la particule piégée (dans une certaine approximation). Les forces optiques étant également proportionnelles à l'intensité d'illumination, une solution évidente serait d'augmenter cette dernière. Seulement un faisceau trop intense peut engendrer la dégradation de la particule à étudier, en particulier si celle-ci est biologique puisque le seuil de dommage des tissus est très bas. L'enjeu est donc d'améliorer la force attractive de gradient ou de diminuer la force répulsive de diffusion tout en conservant une intensité optique suffisamment faible.

Les pinces optiques utilisant le champ proche évanescents à la place du champ lointain radiatif offrent de nouvelles perspectives dans le piégeage et la manipulation de particules. Cette approche permet non seulement de limiter la force de diffusion, mais également de confiner la lumière à une échelle bien inférieure à la limite de diffraction. Ainsi la force de gradient est significativement exaltée. Les avancées technologiques, notamment en terme de nano-fabrication, ont récemment permis la réalisation de pinces en champ proche efficaces pour le piégeage de particules à l'échelle nanométrique avec une très faible intensité lumineuse.

L'utilisation de fibres optiques attire également de plus en plus l'attention dans le domaine du piégeage optique. Elles permettent la réalisation de pinces optiques beaucoup plus compactes et flexibles puisqu'elles ne requièrent pas de substrat ou d'optique encombrante et onéreuse tel qu'un objectif de microscope. Elles peuvent aussi être utilisées plus facilement en limitant des étapes d'alignement optique. Il existe deux grandes approches de pince fibrée : la pince à une fibre et celle à deux fibres optiques placées en vis-à-vis. La première utilise le même principe que la pince optique à focalisation de faisceau et la particule est piégée dans la zone où la force de gradient est dominante. La fibre peut être effilée en pointe afin d'améliorer la focalisation du faisceau émis. La configuration à deux fibres est utilisée pour annuler les forces de diffusion provenant des deux ondes contra-propagatives. Cette géométrie permet d'obtenir un piégeage efficace pour des intensités lumineuses relativement faibles et les faisceaux ne doivent pas nécessairement être fortement focalisés. Elle est également bien adaptée pour le piégeage de plusieurs particules simultanément. Enfin, la structuration contrôlée des extrémités des fibres optiques permet de transformer les modes guidés des fibres en faisceaux plus complexes. Par exemple, il est possible de générer des faisceaux quasi-Bessel ou des vortex optiques, permettant d'améliorer les caractéristiques de piégeage.

Dans ce contexte, nous développons à l'Institut Néel une pince optique à deux fibres nano-structurées en forme de pointes positionnées l'une en face de l'autre. L'objectif principal de ce travail de thèse est de démontrer expérimentalement le piégeage de particules diélectriques en suspension. Divers types de particules sont étudiées, allant de la particule en polystyrène d'un micromètre à des particules luminescentes de YAG :Ce³⁺ mesurant 60 nm de diamètre.

Ces travaux sont présentés dans ce mémoire qui s'organise en 5 chapitres :

- Le premier chapitre introduit les concepts fondamentaux permettant de comprendre le principe du piégeage optique. Nous dresserons également dans cette partie un panorama des différentes techniques de manipulation optique existantes. Les trois grandes familles de pince optique seront détaillées, à savoir les pinces à focalisation de faisceau, en champ proche et fibrée. Nous mettrons

particulièrement en évidence les avancées de chacune de ces méthodes. Ce chapitre sera conclu en situant nos travaux par rapport à l'état de l'art actuel.

- Le second chapitre contient la description complète du dispositif expérimental développé pour le piégeage optique. Nous détaillerons d'abord la pince optique en elle-même, avec notamment le système d'injection optique et la visualisation des particules. Ensuite, nous expliquerons l'élaboration et la caractérisation des fibres optiques, éléments clés de notre pince. Enfin, nous verrons les différentes méthodes permettant de caractériser le piégeage et de mesurer les forces optiques mises en jeu.
- Le troisième chapitre présente tout ce qui concerne le piégeage de particules diélectriques de taille micrométrique. Nous détaillerons notamment les caractéristiques du piège à partir du mouvement Brownien résiduel de la particule, en fonction de différents paramètres expérimentaux. Nous effectuerons également des mesures directes de forces optiques en manipulant la particule de manière contrôlée. Puis nous nous intéresserons à des pointes qui émettent des faisceaux quasi-Bessel non-diffractifs, permettant d'améliorer les caractéristiques de la pince à grande distance.
- Le quatrième chapitre est la suite directe du précédent chapitre et constitue la partie centrale de ces travaux. Il traite du piégeage de particules diélectriques à l'échelle sub-micrométrique et nanométrique. Après avoir détaillé la synthèse et la caractérisation des nanoparticules de YAG :Ce³⁺, nous étudierons et analyserons le piégeage de ces particules. Nous commencerons par piéger des particules de 300 nm, avant de descendre à une taille de 60 nm de diamètre. Ensuite, nous présenterons des simulations numériques permettant une meilleure compréhension des mécanismes du piégeage et de calculer les forces optiques appliquées aux particules de YAG :Ce³⁺. Dans la dernière partie, nous réaliserons une première étude spectroscopique de luminescence sur des particules anisotropes de NaYF₄ :Er/Yb/Gd qui sont piégées optiquement.
- Le dernier chapitre concerne les études en champ proche réalisées entre deux pointes optiques métallisées. Dans un premier temps, la fabrication et la caractérisation de ce type de pointes seront décrites. Dans un second temps, nous mettrons en évidence le couplage en champ proche entre ces pointes. Nous observerons notamment le confinement de l'émission du champ au delà de la limite de diffraction et l'apparition de deux lobes dans les cartes d'intensité en transmission.

CHAPITRE 1

Fondamentaux et état de l'art

1.1	Principe du piégeage optique	6
1.1.1	Introduction	6
1.1.2	Théorie, forces optiques	8
1.1.3	Comment réaliser un piège optique efficace?	13
1.2	Pincés optiques à focalisation de faisceau	15
1.2.1	Pincés optiques holographiques	15
1.2.2	Vortex optique	16
1.2.3	Applications	17
1.3	Pincés optiques en champ proche	19
1.3.1	Guide d'onde	21
1.3.2	Nanostructure plasmonique	22
1.3.3	Cristal photonique	26
1.4	Pincés optiques fibrées en champ lointain	27
1.4.1	Piégeage optique avec une fibre	27
1.4.2	Piégeage avec deux fibres	30
1.4.3	Notre approche	32
1.5	Conclusion	33

L'objectif de ce chapitre est d'introduire les concepts des pincés optiques et de situer nos travaux par rapport à l'état de l'art actuel. Plus particulièrement, nous verrons dans une première partie le principe de base du piégeage optique, sa découverte et les modèles théoriques permettant de décrire les forces optiques appliquées aux particules. Nous verrons dans une deuxième partie des exemples et des applications de pincés optiques à focalisation de faisceau. Dans une troisième partie, nous étudierons

différents types de pinces optiques fonctionnant en champ proche. Nous verrons que ces techniques permettent de confiner et d'exalter le champ électromagnétique, améliorant ainsi les forces optiques de piégeage. Dans une dernière partie, nous détaillerons l'état de l'art des pinces optiques fibrées et introduirons nos travaux.

1.1 Principe du piégeage optique

1.1.1 Introduction

Travaux pionniers d'A. Ashkin

L'invention du laser dans les années 60 permettant l'accès à une source cohérente de lumière a été le début de nombreuses investigations sur les propriétés de la lumière et ses interactions avec la matière. Le laser a notamment permis d'exploiter les forces optiques présentes pour le piégeage optique. Arthur Ashkin fut le pionnier des pinces optiques et il effectua avec son équipe des travaux remarquables dans de nombreux domaines de la manipulation optique.

Initialement, il se concentra sur la pression de radiation exercée par la lumière. En 1970, il démontra la possibilité d'utiliser la pression de radiation afin de déplacer des particules [2]. L'année suivante, il réalisa des expériences de lévitation de particules diélectriques de taille micrométrique [3]. La particule est dans ce cas piégée à l'endroit où la pression de radiation compense la gravité subie par la particule. Il démontra également le confinement d'une particule micrométrique dans un piège utilisant deux faisceaux contra-propagatifs [4].

C'est en 1986 qu'A. Ashkin et son équipe réalisèrent des expériences de piégeage optique en utilisant un faisceau laser fortement focalisé par un objectif de microscope à grande ouverture numérique [1]. La pression de radiation d'un second faisceau laser fut utilisée pour amener les microparticules dans le piège (Fig. 1.1). Cet article est la référence dans la communauté du piégeage optique. Il discuta non seulement d'une toute nouvelle technique mais il décrivit également précisément les forces optiques mises en jeu. La pince optique à focalisation de faisceau telle que nous la connaissons actuellement est née. Nous l'appellerons "pince optique classique" dans la suite de ce chapitre.

Un an plus tard, il démontra la possibilité de manipuler optiquement des espèces biologiques sans les endommager tel que les virus, les bactéries [5] ou les cellules vivantes [6]. Ces résultats ouvrirent ainsi la voie à de nombreuses recherches et applications dans le domaine de la biochimie, de la physique et de la médecine. Plusieurs exemples seront décrits dans la partie **1.2.3**.

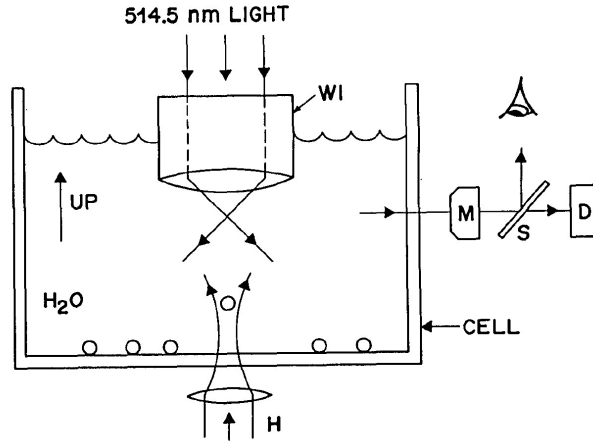


Figure 1.1: Schéma de la première expérience de piégeage optique avec un faisceau, par A. Ashkin en 1986. [1]

Cette technique de manipulation sans contact mécanique présente des avantages majeurs. Les particules peuvent être piégées et manipulées de manière non-invasive, sans aucune contamination et sans qu'elles ne se collent ou qu'elles ne soient endommagées mécaniquement.

Premières estimations des forces optiques

Il est possible de piéger des particules avec de la lumière grâce aux forces optiques. Les photons qui constituent la lumière possèdent une quantité de mouvement $|\vec{p}| = \hbar/\omega$, avec $\hbar = h/2\pi$ la constante de Planck réduite et $\omega = 2\pi/\lambda$ la fréquence angulaire de la lumière. Lorsqu'un photon interagit avec la matière, il subit une variation de quantité de mouvement et engendre une force optique F sur la particule qui peut s'écrire de la manière suivante [7, 8] :

$$F = \frac{d|\vec{p}|}{dt} = Q_{eff} \left(\frac{n}{c}\right) P \quad (1.1)$$

avec n l'indice de réfraction du milieu environnant, c la vitesse de la lumière, P la puissance de la lumière et Q_{eff} un facteur d'efficacité sans dimension.

Ce facteur Q_{eff} dépend des interactions entre la particule piégée et le faisceau lumineux [8]. Il est démontré que Q_{eff} dépend de a^3 , pour des particules de rayon a compris entre 10 et 100 nm. Nous expliquerons cette dépendance dans la suite de ce chapitre. Dans ce régime avec un faisceau focalisé d'une taille de 0,4 μm , une longueur d'onde de 1,06 μm et pour des particules en polystyrène dans l'eau, Q_{eff} est

compris entre $\sim 10^{-6}$ et 10^{-3} (Fig. 1.2). Pour des particules beaucoup plus grandes que la longueur d'onde ($a > 100 \mu\text{m}$), Q_{eff} ne dépend plus de a et atteint un seuil de $\sim 10^{-1}$.

Il en résulte donc que plus la particule est grande, plus la force optique appliquée est importante et donc plus la particule est facilement piégée.

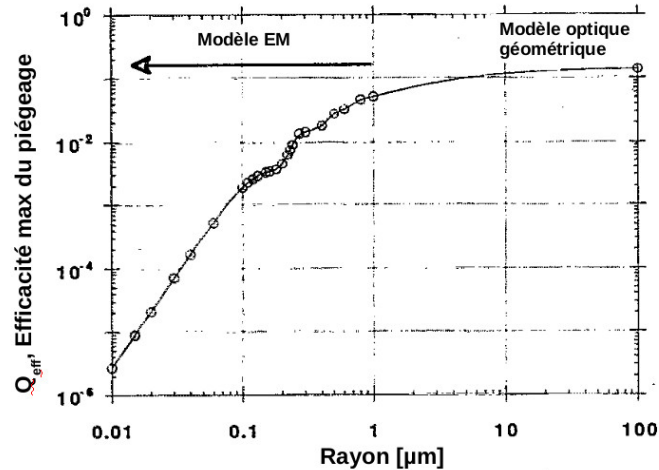


Figure 1.2: Facteur d'efficacité Q_{eff} d'une pince optique en fonction du rayon de la particule. Celle-ci est en polystyrène ($n = 1,57$) suspendu dans l'eau ($n = 1,33$). La taille du faisceau est de $0,4 \mu\text{m}$. [8]

En revenant à l'équation 1.1, nous constatons que la force optique est proportionnelle à la puissance lumineuse. Nous comprenons également par cette expression que F est extrêmement faible puisque qu'elle est inversement proportionnelle à la vitesse de la lumière. Pour des puissances optiques de l'ordre du mW et des particules diélectriques de taille micrométrique en suspension dans l'eau, la force optique est de l'ordre du pN.

Cette approche permet de nous donner une première idée sur l'ordre de grandeur des forces optiques appliquées à une particule. Nous allons maintenant étudier plus en détail ces forces optiques.

1.1.2 Théorie, forces optiques

Nous allons voir que les forces optiques peuvent être calculées de manière exacte avec le tenseur de contraintes de Maxwell ou approximées en fonction de la taille de la particule étudiée (régime de Rayleigh ou de Mie). Nous nous sommes en partie aidés de l'article de revue très complet de M. Dienerowitz pour cette partie théorique [9].

Calcul exact des forces optiques

La conservation de l'énergie électromagnétique lorsque la lumière interagit avec une particule est le principe fondamental impliqué dans les forces optiques. Celles-ci peuvent être calculées en intégrant la variation de la quantité de mouvement du champ électromagnétique dans son ensemble. La densité de la quantité de mouvement est définie par le tenseur de contraintes de Maxwell T_{ij} :

$$T_{ij} = \varepsilon_m \varepsilon_0 E_i E_j^* + \mu_m \mu_0 H_i H_j^* - \frac{1}{2} \delta_{ij} (\varepsilon_m \varepsilon_0 E_k E_k^* + \mu_m \mu_0 H_k H_k^*) \quad (1.2)$$

avec $\varepsilon_m = n_m^2$ et μ_m respectivement la permittivité et la perméabilité relative du milieu environnant, ε_0 et μ_0 celles du vide, E et H respectivement le champ électrique et le champ magnétique, $*$ étant le conjugué complexe. Ce tenseur représente le flux de la quantité de mouvement à travers une surface et est le point de départ de tous les calculs de forces optiques.

La force optique totale est finalement obtenue en intégrant le flux de la quantité de mouvement sur la surface de la particule :

$$\langle \vec{F}_i \rangle = \frac{1}{2} \text{Re} \left(\int_S T_{ij} \vec{n}_j ds \right) = \int_V \frac{1}{2} \text{Re} (\vec{\nabla}_j T_{ij}) dv \quad (1.3)$$

où S est la surface de la particule, V son volume et \vec{n}_j le vecteur normal dirigé en dehors de la surface. $\langle \dots \rangle$ correspond à une moyenne temporelle sur une période d'oscillation, $\vec{\nabla}$ au gradient et Re fait référence à la partie réelle d'un nombre complexe.

Cette méthode utilisant le tenseur de contraintes de Maxwell permet de calculer rigoureusement les forces optiques appliquées sur tout type de particule de toute taille et avec toute forme du champ incident. Cependant ces calculs étant complexes et demandant beaucoup de mémoire informatique, il existe des approximations qui permettent de mieux comprendre le rôle des forces optiques lors du piégeage. Deux approches peuvent être appliquées pour des tailles extrêmes par rapport à la longueur d'onde du laser de piégeage.

Approximation dipolaire : régime de Rayleigh

Lorsque la particule est très petite comparée à la longueur d'onde (régime de Rayleigh), elle peut être considérée comme un dipôle dans un champ électrique constant. Nous parlons dans ce cas de l'approximation dipolaire. Les forces optiques appliquées à la nanoparticule peuvent alors être calculées de manière analytique. Concrètement, nous considérons que l'approximation dipolaire peut s'appliquer pour des particules ayant un rayon maximal d'une centaine de nanomètres.

Le champ électrique exercé sur la particule entraîne une polarisation locale qui engendre un courant sur lequel le champ électromagnétique agit au travers de la force de Lorentz.

Celle-ci peut s'écrire [9–11] :

$$\langle \vec{F}_i \rangle = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_m}{2} \text{Re}[\alpha \vec{E}_j \vec{\nabla}_i \vec{E}_j^*] \quad (1.4)$$

avec α la polarisabilité effective de la particule. C'est une valeur complexe qui est donnée par la relation suivante :

$$\alpha = \alpha' + i\alpha'' = \frac{\alpha_0}{1 - i\frac{k^3}{6\pi}\alpha_0} \quad (1.5)$$

où α' et α'' étant la partie réelle et la partie imaginaire de la polarisabilité, $k = k_0 n_m = 2\pi n_m / \lambda$ le nombre d'onde et α_0 qui est obtenu par la relation de Clausius-Mossotti :

$$\alpha_0 = 4\pi a^3 \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \quad (1.6)$$

avec a et $\varepsilon_p = n_p^2$ respectivement le rayon et la permittivité relative de la particule.

La moyenne temporelle du champ électrique se propageant suivant \vec{k} s'écrit : $\vec{E}(r) = E_0 e^{i(\vec{k}\cdot r)}$. En considérant cette expression et celle de α , la force décrite éq. 1.4 peut se mettre sous la forme :

$$\langle \vec{F}_i \rangle = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_m}{2} \text{Re}\{(\alpha' + i\alpha'')\left[\frac{1}{2}\vec{\nabla}_i |E_0|^2 - i|E_0|^2 \vec{\nabla}_i(\vec{k} \cdot r)\right]\} \quad (1.7)$$

ou encore :

$$\langle \vec{F}_i \rangle = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_m}{4} \alpha' \vec{\nabla}_i |E_0|^2 + \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_m}{2} \alpha'' |E_0|^2 \vec{k} \quad (1.8)$$

À partir de cette dernière relation, nous pouvons définir la force optique comme étant la somme de deux principales composantes :

- Le premier terme décrit une **force de gradient** F_{grad} . Cette force conservative dérive d'une énergie potentielle et elle est proportionnelle à la partie réelle de la polarisabilité de la particule α' . Concrètement, F_{grad} attire la particule dans la zone où le champ électromagnétique est le plus intense tel que le point focal d'une lentille.

- Le second terme représente une **force de diffusion** F_{diff} qui correspond au transfert de la quantité de mouvement du champ d'excitation à la particule par la partie imaginaire dissipative de sa polarisabilité α'' . Cette force non conservative correspond à la pression de radiation qui pousse la particule dans la direction de la propagation de la lumière.

Dans l'approximation dipolaire, nous avons vu que la particule est très petite devant λ . Autrement dit, nous avons $ka \ll 1$. En revenant à l'expression de la polarisabilité décrite éq. 1.5, nous pouvons approximer les parties réelle et imaginaire de la manière suivante :

$$\alpha' = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{k^6 \alpha_0^2}{36\pi^2}} \simeq \alpha_0$$

$$\alpha'' = \frac{\alpha_0^2 k^3}{6\pi(1 + \frac{k^6 \alpha_0^2}{36\pi^2})} \simeq \frac{\alpha_0^2 k^3}{6\pi}$$
(1.9)

Finalement à partir des équations 1.8 et 1.9, les forces de gradient et de diffusion s'expriment en fonction des paramètres de la particule et du champ incident par :

$$\vec{F}_{grad} = \pi \varepsilon_0 \varepsilon_m a^3 \left(\frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \right) \vec{\nabla} |E_0|^2$$

$$= \frac{2\pi n_m a^3}{c} \left(\frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \right) \vec{\nabla} I_0$$
(1.10)

$$\vec{F}_{diff} = \frac{4}{3} \pi \varepsilon_0 \varepsilon_m \vec{k}^4 a^6 \left(\frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \right)^2 |E_0|^2$$
(1.11)

À travers ces expressions, nous constatons que F_{grad} est notamment proportionnelle au gradient d'intensité du champ et au contraste de la permittivité relative de la particule dans le milieu environnant. Lorsque la permittivité de la particule est supérieure à celle du milieu, F_{grad} est attractive.

Quant à la force de diffusion F_{diff} , nous remarquons qu'elle est dirigée selon la direction de propagation de la lumière, qu'elle est proportionnelle à l'intensité lumineuse et que sa valeur est toujours positive.

Enfin, les forces optiques dépendent de la taille de la particule. En particulier, nous remarquons que $\mathbf{F}_{grad} \propto \mathbf{a}^3$ alors que $\mathbf{F}_{diff} \propto \mathbf{a}^6$. Ainsi, plus la particule sera petite et plus la force de gradient prendra de l'ampleur par rapport à la force de diffusion.

Pour avoir une idée plus précise sur l'ordre de grandeur de ces forces, prenons un exemple concret. Nous considérons une sphère de polystyrène ($n_p = 1,58$) de rayon a dans l'eau ($n_m = 1,33$). Cette sphère est positionnée dans un faisceau Gaussien focalisé de largeur $w_0 = 1 \mu\text{m}$. La longueur d'onde est $\lambda = 808 \text{ nm}$ et la puissance $P = 10 \text{ mW}$. L'intensité du faisceau s'écrit [12] :

$$I(z) = \left(\frac{2P}{\pi w_0^2}\right) \frac{1}{1 + (2\hat{z})^2} \quad (1.12)$$

avec $\hat{z} = z/kw_0^2$ le vecteur unité dans la direction de propagation de l'onde.

Les valeurs des forces de gradient et de diffusion sont inscrites dans le tableau 1.1, pour des particules de trois rayons différents situées à $z = 1 \mu\text{m}$ du point focal. Nous remarquons que les forces agissant sur les nanoparticules sont très faibles. Comme prévu, elles diminuent très rapidement lorsque la taille de la particule diminue et cette régression est encore plus prononcée avec la force de diffusion.

Table 1.1: Valeurs des forces optiques pour des sphères en polystyrène de différents rayons.

Rayon particule [nm]	Force de gradient [fN]	Force de diffusion [fN]
100	$-3,2 \cdot 10^{-1}$	1,5
50	$-4,0 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$
5	$-4,0 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-8}$

Optique géométrique : régime de Mie

Lorsque la taille de la particule est très grande devant la longueur d'onde (typiquement $a > 10\lambda$), le faisceau incident peut être décomposé en rayons individuels d'une certaine intensité, direction et quantité de mouvement. Ces rayons se propagent linéairement dans un environnement uniforme non-dispersif et peuvent être décrits par l'optique géométrique.

Nous considérons une particule non absorbante diélectrique, d'indice de réfraction supérieur au milieu environnant. Dans un premier temps, celle-ci est positionnée dans un faisceau Gaussien collimaté (Fig. 1.3.a). Les rayons incidents A et B sont réfractés à travers la particule et changent de direction. La variation de quantité de mouvement des photons qui en résulte produit des forces optiques F_A et F_B . Ces forces sont d'autant plus grandes que le champ est intense. La force totale résultante (F_{res}) tend donc à attirer la particule vers la zone à plus forte densité de champ, au

niveau du centre du faisceau. La composante perpendiculaire à la force résultante F_{res} est appelée force de gradient, alors que la composante parallèle est la force de diffusion. Nous retrouvons ainsi les deux forces décrites précédemment dans le régime de Rayleigh.

Afin de maintenir la particule de manière stable dans la direction axiale, le faisceau est fortement focalisé par un objectif de microscope (Fig. 1.3.b). Ainsi, un gradient supplémentaire est créé dans cette direction et la force résultante tend à attirer la particule au niveau du point focal de l'objectif.

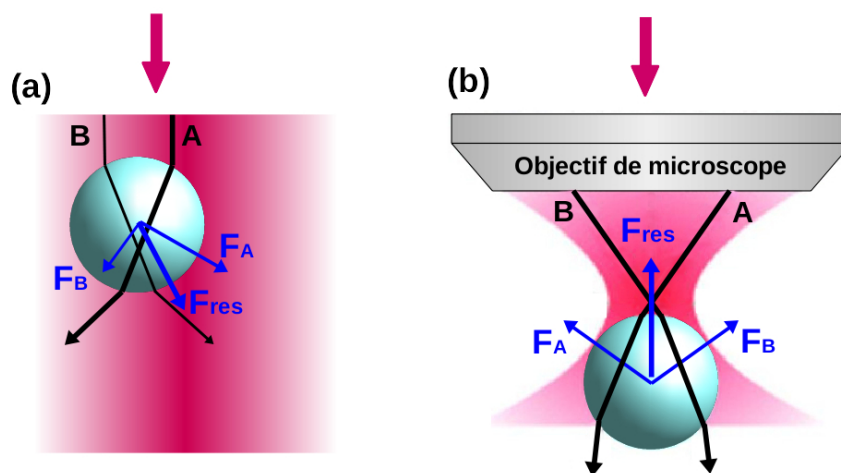


Figure 1.3: Représentation des forces optiques par l'approche de l'optique géométrique dans un faisceau Gaussien collimaté (a) et fortement focalisé (b).

1.1.3 Comment réaliser un piège optique efficace ?

Pour obtenir un piégeage stable avec un seul faisceau, il est nécessaire que la force de gradient domine la force de diffusion. Cette condition nécessite un faisceau fortement focalisé qui diverge suffisamment rapidement du point focal. C'est pour cette raison que la pince optique classique utilise un objectif de microscope à très grande ouverture numérique (N.A. pour "Numerical Aperture"). La particule est typiquement piégée à proximité du point focal de l'objectif¹ (Fig. 1.4).

1. La particule est en réalité piégée derrière le point focal puisque la pression de radiation a tendance à la repousser.

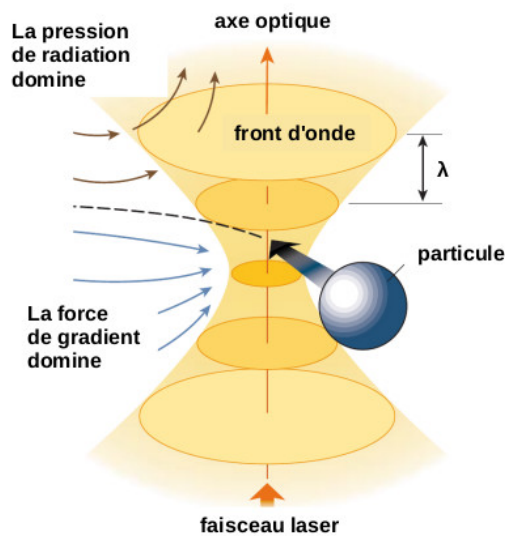


Figure 1.4: Schéma du principe d'une pince optique classique. [13]

Un piège optique efficace nécessite plusieurs conditions :

- Un fort gradient du champ électromagnétique, comme nous l'avons expliqué.
- Limiter la force répulsive de diffusion. La pince optique en champ proche le permet, comme nous le verrons par la suite.
- Une puissance lumineuse suffisamment importante pour un piégeage efficace, tout en essayant de la limiter. Une trop grande puissance peut engendrer des effets néfastes au piégeage, tels que des mouvements de convection qui déstabilisent les particules en suspension voire l'endommagement de l'objet piégé.
- Une longueur d'onde qui est peu absorbée par l'eau et les espèces biologiques. Cela évite des effets thermiques et d'endommager les particules. Le proche infrarouge est ainsi systématiquement utilisé.
- Une taille du point focal du faisceau comparable à la taille de la particule piégée.
- Travailler avec des particules en suspension. Nous avons vu que les forces optiques sont de l'ordre du pN. Les forces d'adhésion (Van Der Waals, capillaire, électrostatique) étant plus importantes de plusieurs ordres de grandeur, il est nécessaire que les particules à étudier ne soient pas posées sur une surface.

1.2 Pinces optiques à focalisation de faisceau

La pince optique classique à focalisation de faisceau est en constante évolution depuis son introduction en 1986. C'est aujourd'hui un outil bien connu qui est commercialisé. Des entreprises tel que Thorlabs, Cell Robotics ou Arryx Incorporated proposent cet outil. De nombreuses recherches se basant sur cette pince classique sont cependant toujours en cours dans le but d'améliorer la manipulation de micro-objets. Il existe également un très grand nombre d'applications, notamment dans le domaine de la biophysique et la médecine. Nous présenterons quelques exemples par la suite qui sont en partie extraits de l'article de revue de D.G. Grier [13].

1.2.1 Pinces optiques holographiques

Les pinces optiques holographiques permettent de piéger un grand nombre de particules simultanément à partir d'un seul faisceau. Le principe repose sur la structuration par diffraction d'un faisceau Gaussien en une multitude de faisceaux. Chaque faisceau crée ainsi un piège optique séparé. En pratique, le faisceau est conduit sur un élément optique de diffraction particulier qui modifie la phase du front d'onde sans modifier son amplitude, appelé kinoforme. Le faisceau incident est ainsi séparé en plusieurs faisceaux distincts. Chaque faisceau est alors fortement focalisé sur l'échantillon par un objectif de microscope unique (Fig. 1.5) [14].

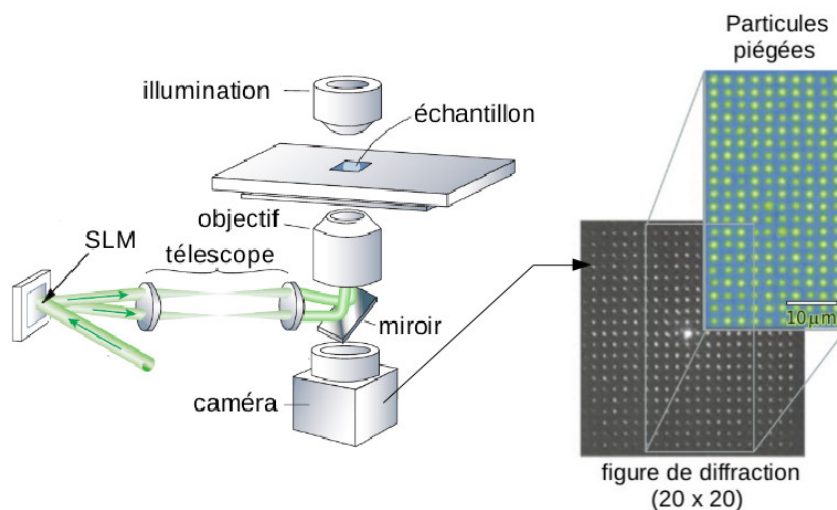


Figure 1.5: Principe de la pince optique holographique permettant de piéger jusqu'à 400 particules diélectriques de $0,8 \mu\text{m}$ de diamètre. [15]

L'élément optique peut être remplacé par un modulateur spatial de lumière à cristal liquide (SLM pour "Spatial Light Modulator") qui permet de générer des hologrammes et de contrôler leurs formes [15]. Dans l'exemple présenté, l'équipe de D.G. Grier a piégé jusqu'à 400 particules diélectriques faisant $0,8 \mu\text{m}$ de diamètre. Ils ont également démontré le déplacement de particules pour former de nombreux motifs en 3 dimensions (Fig. 1.6).

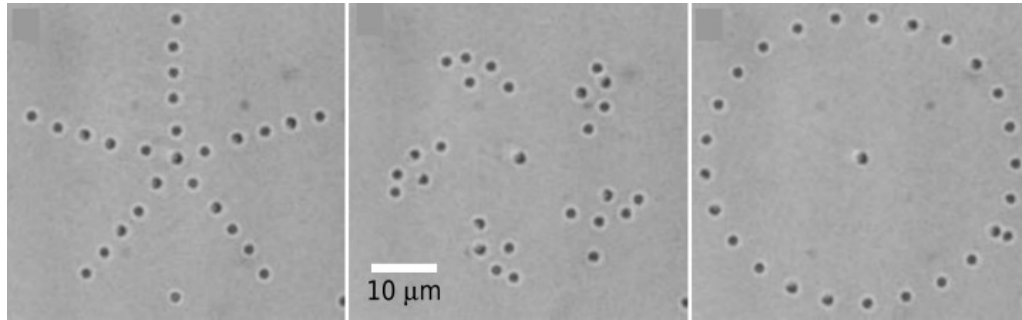


Figure 1.6: Différents motifs constitués de 26 sphères diélectriques d' $1 \mu\text{m}$ de diamètre piégées avec une pince optique holographique. [15]

1.2.2 Vortex optique

La modification du front d'onde du faisceau utilisé pour le piégeage permet de modifier complètement les caractéristiques de la pince optique. Par exemple, un faisceau Gaussien de mode fondamental TEM_{00} peut être converti en un vortex ayant un mode hélicoïdal à l'aide d'un profil de phase spécifique [16] (Fig. 1.7.a). Le faisceau n'est alors plus focalisé en un point mais a une forme d'anneau (Fig. 1.7.b).

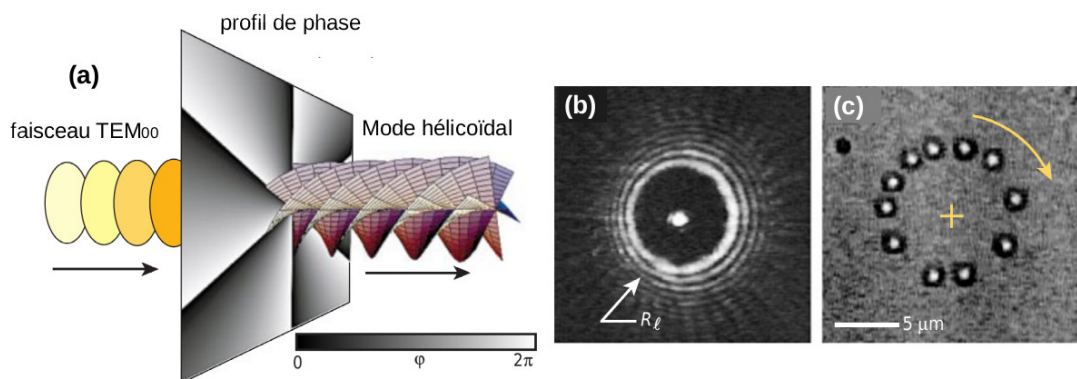


Figure 1.7: Vortex optique créée à partir de modes hélicoïdaux de la lumière. (a) Mode hélicoïdal créée à partir d'un faisceau TEM_{00} . (b) Image du vortex optique créée. (c) Particules diélectriques de $0,8 \mu\text{m}$ piégées sur l'anneau. [13]

Plusieurs particules diélectriques de $0,8 \mu\text{m}$ sont piégées au niveau de l'anneau de lumière avec une puissance de 500 mW . Ce mode hélicoïdal est particulier du fait que la lumière possède un moment angulaire qu'elle transmet aux particules piégées. Ainsi elles peuvent également tourner autour de l'anneau créant un vortex optique (Fig. 1.7.c).

1.2.3 Applications

Microfabrication et application microfluidique

La pince optique peut être utilisée pour fabriquer des structures par photopolymérisation. En effet, l'illumination intense au niveau du point focal de la pince est idéale pour conduire des réactions photo-chimiques dans un volume restreint. Terray *et al.* ont ainsi fabriqué une ligne de microsphères dans une pince à focalisation de faisceau [17]. Pour ce faire, ils ont dispersé des sphères diélectriques de $0,64 \mu\text{m}$ dans une solution photosensible. Un faisceau est alors fortement focalisé permettant non seulement de piéger les particules mais aussi de les polymériser entre elles.

Ces chaînes de particules sont par la suite utilisées pour créer une micro-valve. Celle-ci est contrôlée par la pince optique et permet de diriger la progression de microparticules dans un canal microfluidique (Fig. 1.8).

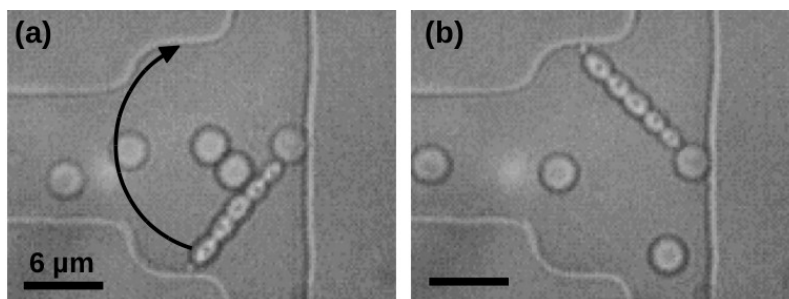


Figure 1.8: Valve constituée de microparticules assemblées par photopolymérisation. La valve est contrôlée par la pince optique et dirige les microparticules vers le haut (a) ou vers le bas (b). [17]

Applications biologiques

Le caractère non-invasif et non-destructif de la pince optique en fait un outil idéal pour des applications dans le domaine de la biophysique, de la biochimie ou de la médecine. Nous pouvons citer quelques exemples :

- *La manipulation et la sélection de cellules.* Les pinces optiques permettent de sélectionner, de manipuler et d'étudier les interactions entre cellules. Par

exemple, des neurones de la rétine ont été piégés et placés très proche les uns des autres. Ainsi des contacts intercellulaires et la régénération de synapses entre eux ont été observés [18].

- *La caractérisation des propriétés mécaniques d'espèces biologiques.* Les pinces optiques ont permis d'acquérir une meilleure connaissance des propriétés viscoélastiques des membranes en assurant un contrôle précis des forces optiques exercées sur celles-ci. Une expérience consiste à fixer deux microbilles à une protéine. Ces deux billes sont piégées optiquement et écartées pour étudier les propriétés de viscoélasticité de la protéine. Il a été démontré que ces propriétés altèrent directement les propriétés viscoélastiques du muscle. Elles contribuent donc à la performance du muscle et cette méthode peut permettre de déceler certaines pathologies musculaires [19, 20]. L'élasticité de la membrane d'un globule rouge a également été étudiée d'une manière similaire [21] (Fig. 1.9). Une déformation persistante du globule rouge a pu être observé, signifiant une anomalie de certaines protéines membranaires.

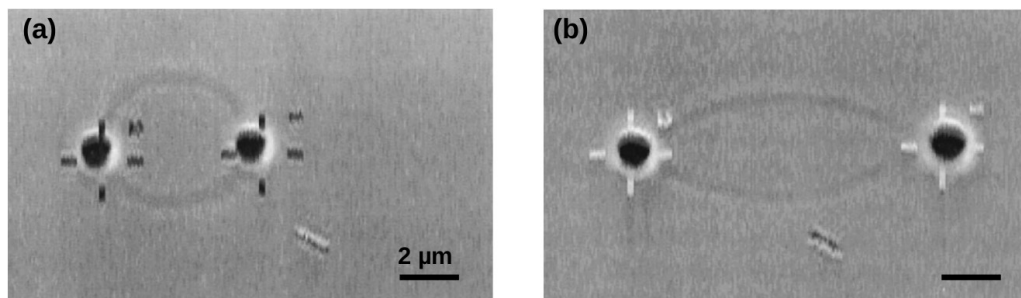


Figure 1.9: Images d'un globule rouge avant (a) et après étirement (b) par la séparation de deux billes diélectriques d'1 µm de diamètre piégées optiquement. [21]

- *Des mesures de propriétés motrices de cellules mobiles.* Des spermatozoïdes ont été piégés et la force appliquée grâce à leur mobilité flagellaire pour échapper au piège optique a été étudiée. Cette étude constitue un outil de détection de la stérilité [22]. Une équipe a également mesuré des forces de motilité sur des chromosomes à partir de pinces optiques, permettant une meilleure compréhension de la division cellulaire [23].
- *L'étude de moteurs moléculaires tels que la protéine kinésine ou l'ARN polymérase.* Ce dernier se fixe à l'ADN pour induire sa transcription en ARN messager. Le déplacement et la force de ce moteur moléculaire ont été étudiés avec une pince optique. L'ARN polymérase est fixé sur une surface et mis en contact avec un brin d'ADN à l'extrémité duquel est fixée une microbille diélectrique piégée par un faisceau laser (Fig. 1.10). Pendant la transcription,

le brin d'ADN se déplace par l'ARN polymérase. Ce déplacement induit un mouvement de la bille piégée qui est alors détecté par la pince optique [24].

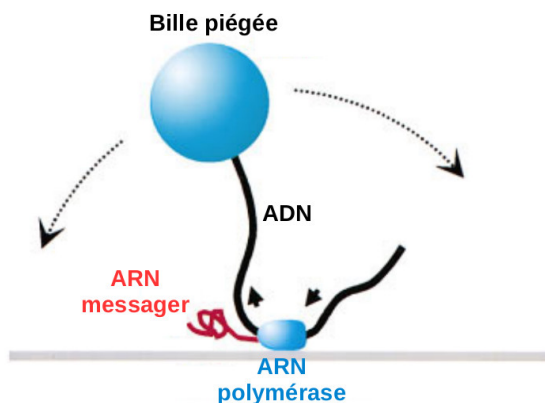


Figure 1.10: Schéma de l'étude du mouvement de l'ARN polymérase avec une pince optique. [24]

1.3 Pincés optiques en champ proche

Nous avons vu qu'une pince optique à focalisation de faisceau efficace demande un fort gradient d'intensité du champ électromagnétique. Même s'il est possible de focaliser très fortement un faisceau laser avec un objectif de microscope à très grande N.A., les pincés optiques fonctionnant en champ lointain restent limitées par la diffraction de la lumière ($\sim \lambda/2$).

Le piégeage de nanoparticules diélectriques devient alors délicat puisque les forces optiques qui dépendent de la taille de la particule dans le régime de Rayleigh (éqs. 1.10, 1.11) sont très faibles et le mouvement Brownien devient au contraire plus important. Le seul moyen d'améliorer les forces avec les pincés classiques est d'augmenter l'intensité lumineuse. Seulement un faisceau trop intense peut engendrer la dégradation de la particule à étudier et c'est encore plus vrai si celle-ci est biologique. Par exemple dans l'article référence d'Ashkin [1], il a remarqué qu'une particule en polystyrène de 109 nm de diamètre ne survivait que 25 s dans le faisceau focalisé. Les plus petites de moins de 100 nm, elles ont été détruites tellement rapidement qu'il n'a pas été possible d'effectuer des mesures.

Il est donc nécessaire de trouver des alternatives pour piéger des nanoparticules sans les détériorer. De nombreuses recherches s'effectuent actuellement dans le but d'augmenter les forces de gradient afin d'améliorer l'efficacité des pincés optiques. Le piégeage optique en champ proche est ainsi en plein essor puisqu'il permet de

confiner la lumière à une échelle bien inférieure à la limite de diffraction, et donc d'augmenter significativement les forces de gradient tout en limitant les forces de diffusion.

Plus particulièrement, les ondes évanescentes sont utilisées dans de nombreuses configurations pour le piégeage optique [25] (Fig. 1.11). Celles-ci peuvent être créées à la surface d'un matériau par réflexion totale de la lumière. Le confinement intrinsèque de ce type d'onde qui décroît exponentiellement à partir de la surface permet d'obtenir d'important gradient. Les particules peuvent ainsi être maintenues à proximité de cette surface.

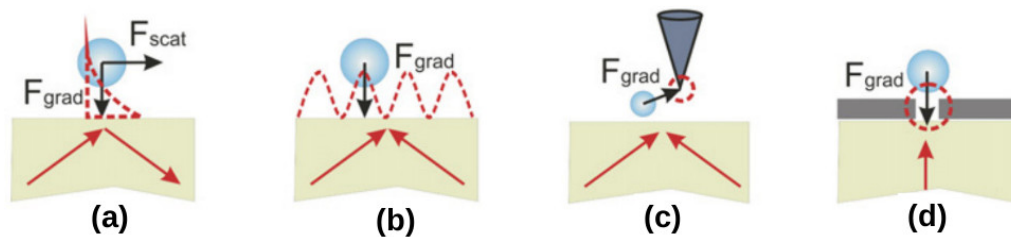


Figure 1.11: Vue d'ensemble de différentes configurations de piégeage utilisant le champ évanescent. (a) Réflexion totale. (b) Réflexion de deux ondes créant des franges d'interférences. (c) Pointe métallique. (d) Structures plasmoniques. [25]

Kawata et son équipe ont été les premiers à démontrer expérimentalement le déplacement de microparticules diélectriques dans un champ évanescent généré par réflexion totale d'un faisceau laser à la surface d'un prisme à haut indice [26]. Dans cette configuration, la particule est donc attirée au niveau de la surface par la force de gradient. Elle est également poussée le long de cette surface par la force de diffusion de l'onde qui se propage dans le milieu (Fig. 1.11.a).

Pour que la particule soit piégée à une position fixe, plusieurs approches sont possibles. Deux ondes contra-propagatives qui interfèrent peuvent être utilisées pour créer une onde stationnaire [27] (Fig. 1.11.b). Le champ évanescent peut également être diffusé et confiné par des objets métalliques de taille sub-longueur d'onde tels que l'extrémité d'une pointe [28] (Fig. 1.11.c), au niveau d'un trou dans un film métallique [29, 30] (Fig. 1.11.d) ou de nano-antennes en or [31]. On parle dans ce cas de pinces plasmoniques, que nous détaillerons dans la partie 1.3.2.

Finalement nous pouvons distinguer trois grandes approches utilisant les ondes évanescentes pour piéger des particules en champ proche : le guide d'onde, les nanostructures plasmoniques et les cristaux photoniques.

1.3.1 Guide d'onde

Dans la continuité de leurs travaux, Kawata *et al.* ont démontré le transport de particules diélectriques et métalliques de 0,5 à 5 μm de diamètre le long d'un guide d'onde réalisé par échange d'ions [32]. Le principe est d'injecter un faisceau laser dans le guide, la particule est alors piégée latéralement par le champ évanescent et poussée dans la direction de la propagation de l'onde, au niveau de la surface du guide (Fig. 1.12). Les particules peuvent ainsi se déplacer à une vitesse de 14 $\mu\text{m s}^{-1}$ avec une puissance optique de 80 mW.

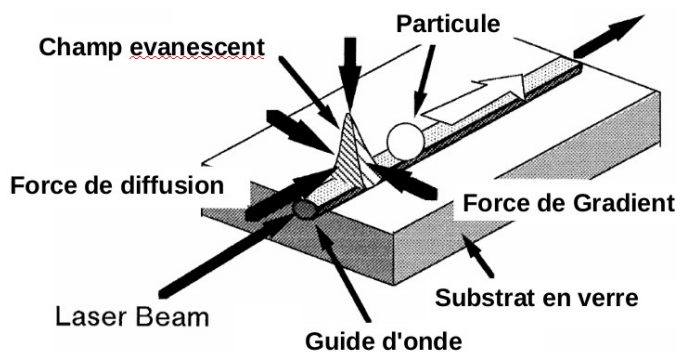


Figure 1.12: Principe de la manipulation de particules sur un guide d'onde. [32]

Le déplacement de particules sur un guide d'onde est notamment utilisé pour réaliser des systèmes de triage [33]. Dans cette référence, K. Grujic *et al.* utilisent un guide d'onde en forme de Y (une entrée, deux sorties). En contrôlant les conditions d'injection dans le guide, la puissance couplée dans chaque sortie peut être modifiée et ils sont capables de guider des particules de 6 μm de diamètre dans l'un ou l'autre des bras. La puissance maximale à la sortie du guide est de 35 mW.

Les guides d'ondes peuvent également être utilisés pour immobiliser des microparticules et des cellules de manière stable [34, 35]. Pour cela, O.G. Helleso et son équipe ont conçu un guide d'onde en forme de boucle permettant de générer deux ondes contra-propagatives. Le guide est coupé sur quelques micromètres au centre de la boucle créant une micro-cavité (Fig. 1.13.a). Ainsi, les particules diélectriques d'1 μm de diamètre sont transportées par le champ évanescent sur les deux côtés du guide d'onde jusqu'à la cavité. À cet endroit, les particules sont piégées de manière stable grâce aux interférences des deux ondes (Fig. 1.13.b). Le champ étant très divergeant en sortie du guide, en utilisant une séparation suffisamment grande (10 μm), ils ont démontré que la particule pouvait être soulevée d'environ 2,5 μm au-dessus de la surface du guide d'onde avant d'être piégée. La puissance à l'entrée du guide est de 500 mW et ils estiment que la puissance guidée est de 1 à 5 mW.

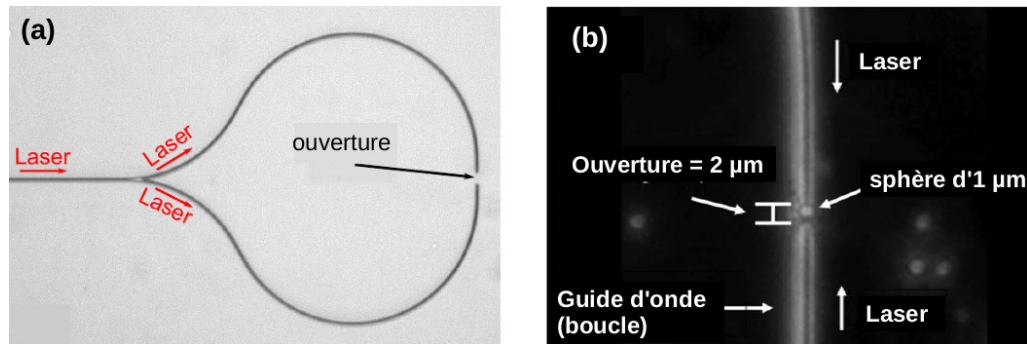


Figure 1.13: (a) Image du guide d'onde en forme de boucle, avec une cavité de 10 µm. (b) Piégeage stable d'une particule d'1 µm dans une cavité de 2 µm. [34, 35]

1.3.2 Nanostructure plasmonique

Au-delà des champs évanescents sur des matériaux diélectriques, les plasmons polaritons de surfaces (SPP pour “surface plasmons polaritons”) offrent de nouvelles opportunités dans la manipulation optique. Ils permettent non seulement de confiner le champ mais aussi de l'exalter très localement, créant ainsi d'immenses gradients de champ. Des calculs théoriques et des mesures expérimentales ont montré que les forces optiques pouvaient être amplifiées de 2 à 4 ordres de grandeur comparées au piégeage conventionnel [36, 37].

Les SPP peuvent être localisés dans des nanostructures métalliques de diverses géométries. Dans ce cas, ils sont appelés “plasmons de surface localisés” (LPS pour “localised surface plasmon”) ou résonances plasmoniques. En se couplant avec des ondes propagatives, ces nanostructures concentrent et localisent le champ électromagnétique dans des volumes très confinés latéralement.

Le piégeage plasmonique se développe très fortement depuis ces cinq dernières années. Une grande variété de géométries de nanostructures en or a été conçue pour piéger des micro et nanoparticules. Des exemples sont présentés dans le tableau 1.2.

Table 1.2: Exemples de pinces optiques plasmoniques.

Type de pince		Particule piégée		Intensité [$\mu\text{W } \mu\text{m}^{-2}$]	Ref.
Géométrie	Dimensions [μm]	Diam. [μm]	Matériau		
surface	plan	5	polystyrène	3	[38]
guide d'onde	largeur : 1 - 2	1 - 2	polystyrène	$4 \cdot 10^1$	[39]
disques	diamètre : 4,8	3 - 5	polystyrène	$5 \cdot 10^1$	[40]
antenne dipolaire	écart : $1 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-2}$	or	$2 \cdot 10^3$	[41]
paire de carrés	écart : $6 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-1}$	polystyrène	$6 \cdot 10^2$	[42]

L'équipe de R. Quidant et de R. Gordon ont réalisé une pince plasmonique assez particulière où la particule piégée influence très fortement le champ électrique local et joue un rôle important dans le mécanisme de piégeage [43]. Cette méthode est appelée "Self-Induced Back Action" (SIBA). Elle permet de piéger des nanoparticules avec une puissance optique moindre.

Le piège consiste en une ouverture cylindrique de 310 nm de diamètre dans une couche d'or de 100 nm d'épaisseur. La taille de l'ouverture est choisie par rapport à la longueur d'onde, de manière à ce que la lumière soit au seuil de transmettre par le trou. Un champ proche est généré en focalisant la lumière sur l'ouverture et un système très sensible aux variations en position de la particule est créé (Fig. 1.14.a).

La particule ayant un indice de réfraction supérieur à celui de l'eau, sa présence dans la cavité augmente localement l'indice effectif. Elle provoque ainsi un décalage de la longueur d'onde de résonance et "voit" une cavité plus grande, ce qui entraîne une augmentation de l'intensité transmise (Fig. 1.14.b).

Ils ont démontré que le mouvement de la particule dans la cavité crée une force supplémentaire auto-induite qui la retient au niveau de sa position d'équilibre. Ils ont ainsi piégé des particules diélectriques de 50 nm de diamètre avec une puissance de 1,9 mW.

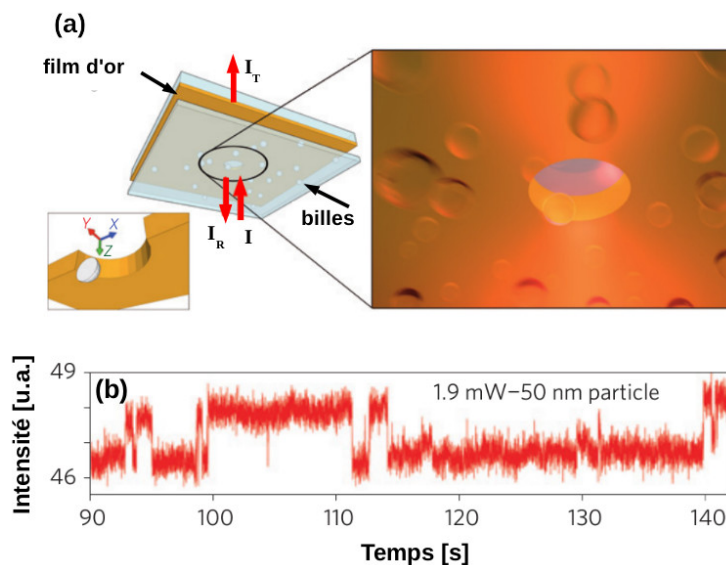


Figure 1.14: (a) Représentation du piégeage plasmonique SIBA utilisant une ouverture de 310 nm dans un film métallique. (b) Évolution temporelle de l'intensité transmise avec le piégeage d'une particule de 50 nm à 1,9 mW. [43]

Dans la continuité de ces travaux, le groupe de R. Gordon a amélioré la méthode SIBA en séparant le couplage du confinement de la lumière. Ainsi, ils ont pu optimiser le couplage tout en améliorant le confinement, leur permettant de piéger des particules encore plus petites. Leur pince optique consiste en une paire de nano-ouvertures cylindriques de 150 nm de diamètre, avec deux bouts pointus séparés de 15 nm dans une couche d'or de 100 nm d'épaisseur (Fig. 1.15.b). Le système est placé entre deux objectifs de microscope (Fig. 1.15.a), le couplage est réalisé par les trous et les objets sont piégés au niveau de la nano-séparation où le champ est extrêmement confiné.

Ils ont ainsi démontré expérimentalement le piégeage de particules en silice de 12 nm de diamètre [44] et de protéine unique de 3,4 nm [45] avec des puissances de 7 - 8 mW. De nouveau, la présence de l'objet dans le piège implique une augmentation du signal transmis par la structure. Ils ont aussi pu déformer optiquement et de manière réversible une protéine (albumine de sérum bovin). Cette déformation se traduit par deux niveaux discrets visibles dans le signal transmis (Fig. 1.15.c).

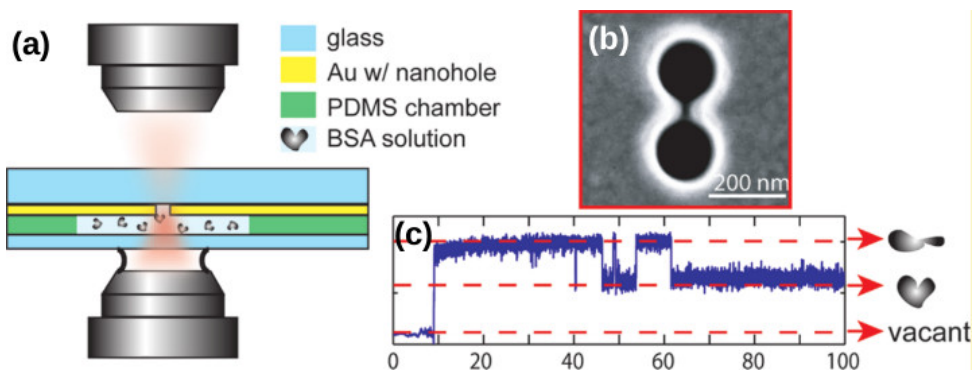


Figure 1.15: (a) Montage expérimental. (b) Image MEB de la paire de nano-trous. (c) Évolution temporelle de la puissance transmise à travers la double ouverture avec le piégeage d'une protéine. [45]

Très récemment, le piégeage en champ proche a été démontré expérimentalement en intégrant des nanostructures plasmoniques au bout de fibre optique recouverte de métal.

Il est important de noter qu'une attention particulière doit être accordée à la puissance du laser. Celle-ci doit rester suffisamment faible pour ne pas détériorer la couche métallique autour de la fibre. Le seuil de dommage dépend de la géométrie de la fibre et de son ouverture. Par exemple pour une pointe métallisée avec une ouverture d'une centaine de nm, il est estimé que le seuil de dommage est typiquement de 4 mW à l'entrée de la fibre soit 0,2 mW à l'intérieur de la fibre, en considérant une efficacité de couplage de 5% [46].

Dans la continuité de leur travaux, l'équipe de R. Gordon a intégré sa cavité en forme de double ouvertures au bout d'une fibre clivée recouverte de 80 nm d'or [47]. Les dimensions de la structure sont similaires. Ils ont ainsi piégé des particules en polystyrène de 40 et de 20 nm de diamètre avec une puissance de $5 - 6 \text{ mW } \mu\text{m}^{-2}$.

L'année dernière, deux groupes ont étudié expérimentalement le piégeage de particules sub-micrométriques avec une pointe optique métallisée sur laquelle est gravée une ouverture en forme de nœud papillon (BNA pour "bowtie nano-aperture") [48, 49]. Cette géométrie permet de confiner et d'exalter le champ très efficacement sous certains paramètres.

L'équipe de T. Grosjean a conçu une cavité BNA de 165 nm de largeur avec un espace de 35 nm, au bout d'une pointe recouverte d'une couche de 220 nm d'aluminium (Fig. 1.16.a). Ces dimensions sont choisies de telle sorte que le BNA soit résonant à la longueur d'onde de piégeage de 1064 nm (Fig. 1.16.d). Le champ électromagnétique est ainsi confiné au niveau de l'ouverture du BNA. Son exaltation dépend très fortement de la polarisation de la lumière injectée dans la fibre. Pour une polarisation le long de la séparation du BNA, l'exaltation est optimale (Fig. 1.16.b). Au contraire, l'intensité du champ est minimale lorsque la polarisation est perpendiculaire (Fig. 1.16.c).

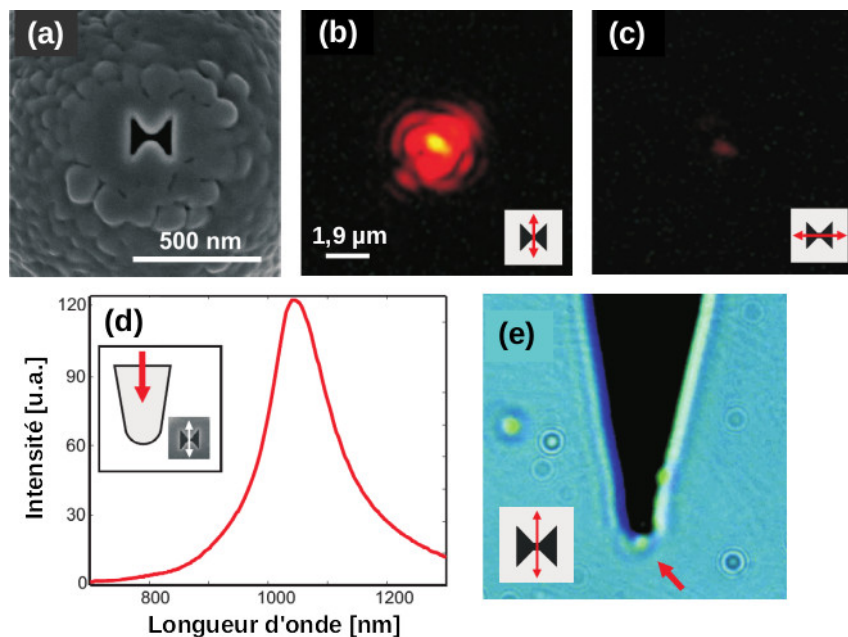


Figure 1.16: (a) Cavité en forme de nœud papillon (BNA) au bout d'une pointe optique. (b)-(c) Émission en champ lointain avec deux polarisations de l'onde (flèches en insert). (d) Spectre de résonance du BNA calculé. (e) Piégeage d'une bille diélectrique de 500 nm de diamètre. [49]

Ils ont piégé optiquement des billes de polystyrène de 500 nm de diamètre lorsque le faisceau injecté est polarisé le long de la séparation du BNA (Fig. 1.16.e). En tournant la polarisation de 90° , le régime du BNA devient non résonant et ils ont constaté que le piégeage n'était plus efficace. La puissance du faisceau à la sortie de la diode laser est d'1 mW. Au delà de 2,5 mW, ils ont observé d'importants mouvements de convection des particules dû à l'échauffement localisé au bout de la pointe.

1.3.3 Cristal photonique

Une autre possibilité de confiner et d'exalter les champs évanescents est l'utilisation de résonateurs à cristal photonique, qui est constitué de réseaux périodiques dans un matériau diélectrique.

Le groupe de F. de Fornel a démontré le piégeage et l'auto-assemblage de particules dans un champ évanescent d'une cavité à cristal photonique [50]. Leur cavité est définie par deux miroirs à cristaux photoniques intégrés dans un guide d'onde en SOI (Fig. 1.17.a). Ils obtiennent ainsi un facteur de qualité de 1600 dans un volume modal très réduit de l'ordre de $(\lambda/n)^3$. Lorsque la lumière à la longueur d'onde de résonance est couplée dans le guide, une onde stationnaire s'établit dans la cavité avec plusieurs maxima correspondant aux sites de piégeage des particules. L'important gradient du champ combiné avec l'amplification résonante permet un piégeage stable avec de faibles puissances optiques.

Le piégeage d'une particule diélectrique d'1 μm de diamètre est obtenu par la force de gradient générée par le champ évanescent de la cavité. Une puissance de 300 μW est injectée dans le guide d'onde. Ils ont également piégé simultanément jusqu'à 7 particules (Fig. 1.17.b). Dans ce cas, celles-ci s'auto-assemblent dans des géométries très simples de manière à ce qu'elles soient stables.

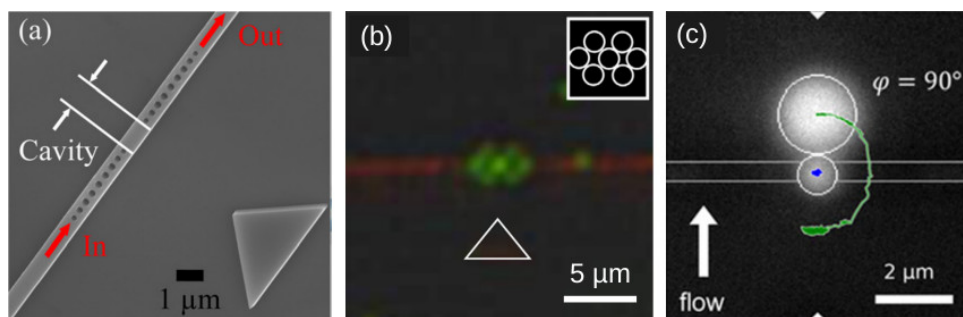


Figure 1.17: (a) Image MEB du cristal photonique et de la cavité. (b) Auto-assemblage de 7 particules d'1 μm de diamètre. [50] (c) Piège d'une double particule d'1 et de 2 μm . Le dimère s'oriente en fonction de la direction du flux imposé. [51]

Dans la continuité de leurs travaux, ils ont étudié le piégeage d'un dimère composé de particules diélectriques d'1 et de 2 μm de diamètre [51]. Ils ont observé que la plus petite particule était préférablement attirée au niveau de la cavité alors que celle de 2 μm n'était soumise qu'à son agitation thermique. Ainsi, ils ont reporté le contrôle de l'orientation du dimère en imposant un flux fluïdique (Fig. 1.17.c).

1.4 Pinces optiques fibrées en champ lointain

L'utilisation de la fibre optique attire de plus en plus l'attention dans le monde du piégeage optique. Ce guide d'onde flexible et accessible commercialement permet de donner une grande compacité à la pince optique. En effet, une pince optique fibrée ne requiert pas de substrat ou d'optique encombrante et onéreuse tel qu'un objectif de microscope. Elles peuvent aussi être intégrées et déplacées en limitant des étapes d'alignement optique.

1.4.1 Piégeage optique avec une fibre

Les pinces optiques utilisant une fibre optique en champ lointain ont vu le jour au début des années 2000 [52, 53]. De nombreux groupes ont depuis démontré expérimentalement et théoriquement le piégeage de particules en 3 dimensions. Dans cette configuration à un faisceau, le principe est identique à la pince optique classique : un piégeage efficace se trouve proche du point focal, à l'endroit où la force de gradient surpasse la force de diffusion (Fig. 1.4). Le faisceau émis par une fibre optique monomode standard clivée n'est pas focalisé et diverge directement. Il est donc nécessaire de trouver des solutions pour focaliser le faisceau afin d'améliorer la force de gradient. L'objectif est également d'éloigner le point focal du bout de la fibre pour éviter sa contamination avec l'adhésion des particules. Différentes approches existent dans la littérature.

La plupart des pinces fibrées possède des fibres dont le bout est effilé ou structuré afin de modifier l'émission de la lumière. La pointe agit comme une lentille et permet d'améliorer considérablement la focalisation et donc la divergence du faisceau en sortie. Nous verrons les différentes techniques de fabrication dans le prochain chapitre (partie 2.2.1).

En 2003, R. S. Taylor *et al.* ont conçu une sonde de forme creuse par gravure chimique au bout d'une fibre monomode (Fig. 1.18.a). La lumière émise en forme d'anneau (voir insert) a permis de piéger des sphères en silice de 2 μm de diamètre à environ 1 μm du bout de la fibre et avec une puissance de 2 mW (Fig. 1.18.b). Ils expliquent cependant que leur fibre ne permet pas de focaliser le faisceau suffisamment pour obtenir une force de gradient qui puisse compenser la force répulsive de diffusion.

Selon eux, la particule est piégée grâce à une force retour électrostatique attractive produite par des effets de charge de surface [53].

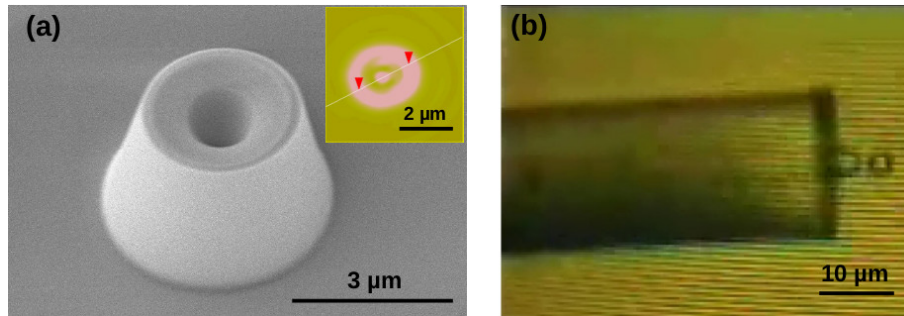


Figure 1.18: (a) Image MEB de la sonde en forme creuse. Insert : émission de la lumière à 420 nm de la fibre. (b) Piégeage d'une bille en silice de 2 µm. [53]

T. Numata *et al.* ont réalisé une pince à une fibre où seules les forces optiques permettent le piégeage. Pour cela, ils ont collé une micro-lentille à l'extrémité d'une fibre monomode clivée. Le faisceau en sortie est ainsi focalisé et le point focal se trouve à 7,4 µm du bout de la fibre. Ils ont alors manipulé optiquement des nanoparticules d'or de 40 à 200 nm et des particules diélectriques de 1 à 3 µm de diamètre avec une puissance en bout de fibre de 15 mW [54].

Des pinces optiques utilisant une fibre optique monomode effilée en forme de pointe sont régulièrement utilisées pour le piégeage de particules diélectriques et d'objets biologiques de taille micronique [55–57].

Z. Liu *et al.* ont démontré l'ajustement de la position de piégeage d'une cellule de levure de 6 µm de diamètre dans la direction axiale de la fibre [58]. Pour ce faire, ils utilisent une fibre optique dont le bout est en forme de pointe ayant deux angles distincts (30 et 60°). La pointe est fabriquée en deux étapes. Elle est d'abord gravée chimiquement donnant une pointe d'angle 30°, puis une décharge de courant est utilisée pour modifier et augmenter l'angle à 60°. Cette géométrie permet de séparer les points focaux des deux modes LP_{01} et LP_{11} . Le point focal Z_{01} du mode LP_{01} se trouve à 3 µm du bout de la pointe (Fig. 1.19.a) alors que celui du mode LP_{11} est à l'intérieur de la pointe (Fig. 1.19.b). En contrôlant le rapport de puissance de ces deux modes, la position de la particule piégée peut être modifiée sur ~ 3 µm le long de l'axe optique. (Fig. 1.19.c-d).

D'autres exemples utilisant des fibres optiques originales tel qu'une fibre à deux cœurs [59], à gradient d'indice [60] ou une nano-antenne émettant un faisceau de quasi-Bessel [61] ont démontré des caractéristiques intéressantes de piégeage.

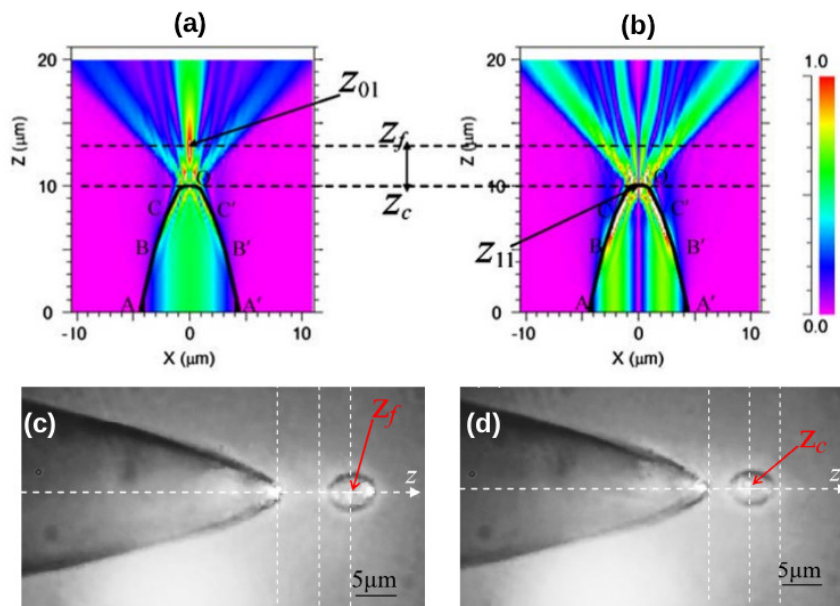


Figure 1.19: Simulation de la distribution du champ émis par la pointe pour le mode LP_{01} (a) et LP_{11} (b). (c)-(d) Piégeage et ajustement de la position d'une cellule le long de l'axe optique. [58]

Enfin, Y. Liu *et al.* ont utilisé des composants optiques en champ proche pour réaliser un piège en champ lointain. Ils ont élaboré une lentille à plasmon de surface au bout d'une fibre clivée recouverte d'une couche d'or [62]. Cette lentille consiste en une série d'anneaux concentriques de différents diamètres (Fig. 1.20.a). La lumière guidée dans la fibre est couplée avec des plasmons de surface dans la couche d'or et la lumière transmise crée un point focal à environ $4 \mu\text{m}$ du bout de la fibre (Fig. 1.20.b). Ils ont ainsi piégé des billes de polystyrène de 520 nm de diamètre et des bactéries *Escherichia coli* avec une puissance optique de $0,7 \text{ mW}$.

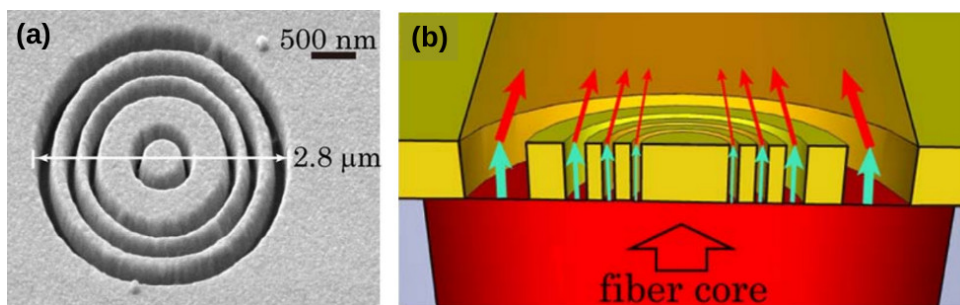


Figure 1.20: (a) Image MEB de la structure en anneaux concentriques. (b) Coupe de la structure en bout de pointe avec la lumière guidée qui est couplé avec les SP. [62]

1.4.2 Piégeage avec deux fibres

Les premières pinces optiques fibrées ont été réalisées avec deux fibres optiques placées en face à face en 1993 [63]. A. Constable et son équipe a utilisé deux fibres optiques monomodes clivées pour piéger des microparticules diélectriques.

Dans cette configuration à deux faisceaux et dans la direction axiale par rapport à l'axe des fibres, la particule n'est plus piégée à l'endroit où la force de gradient domine comme nous l'avons vu jusqu'à présent. Elle est stabilisée à l'endroit où les forces répulsives de diffusion des deux ondes contra-propagatives se compensent. Dans ce cas, un piège efficace ne nécessite donc plus d'avoir un faisceau extrêmement focalisé et divergent.

E. R. Lyons *et al.* ont utilisé une paire de fibre optique monomode effilée, dont le bout est en forme de demi-sphère avec un rayon de courbure de $10\ \mu\text{m}$, pour améliorer la focalisation des faisceaux émis [64]. Ils ont piégé des micro-billes de polystyrène avec une puissance de $20\ \text{mW}$ et une distance entre les pointes allant de $150\ \mu\text{m}$ à $350\ \mu\text{m}$. Pour différents rapports de puissance dans les deux fibres, la particule peut être déplacée dans la direction axiale et rapprochée du point focal de l'une ou de l'autre fibre (Fig. 1.21).

Ils ont piégé des particules de trois tailles différentes : 3 , 5 et $10\ \mu\text{m}$ de diamètre. Ils ont souligné que l'efficacité de piégeage dépendait de la taille de la particule et de l'espace entre les fibres. Ils ont remarqué qu'une efficacité maximale était obtenue lorsque la taille du faisceau émis était comparable à la taille de la particule piégée.

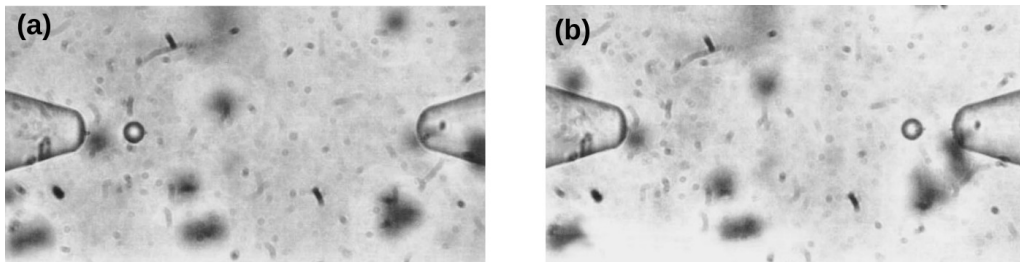


Figure 1.21: (a)-(b) Piégeage et manipulation dans la direction axiale d'une sphère de $10\ \mu\text{m}$ avec une paire de fibres effilées séparée de $155\ \mu\text{m}$. [64]

Les pinces optiques à deux fibres sont bien adaptées pour piéger plusieurs particules simultanément [65, 66]. Le phénomène d'interaction entre plusieurs particules dans un champ optique est appelé "optical binding" [67]. Les particules s'auto-assemblent d'une certaine manière afin de minimiser l'énergie du système global particule-lumière.

W. Singer *et al.* ont étudié l'auto-organisation de particules diélectriques allant de $0,5$ à $10\ \mu\text{m}$ de diamètre [65]. Celles-ci sont piégées simultanément entre 2 fibres

monomodes clivées (mode de $6,6 \mu\text{m}$ de diamètre), qui sont distantes de $80 \mu\text{m}$ et avec une puissance de 100 mW dans chaque fibre. Ils démontrent que l'arrangement des particules dépend principalement de leur taille. Pour des particules beaucoup plus grandes que la longueur d'onde de piégeage, elles sont poussées les unes contre les autres et restent en contact. Au contraire, si les particules sont du même ordre de grandeur que λ , elles se placent à équidistance le long de l'axe optique sans se toucher. Enfin pour des particules plus petites que $\lambda/2$, la distance qui les sépare correspond à λ .

D'autres fibres optiques ayant des formes originales sont utilisées dans cette configuration à 2 faisceaux. S. Valkai et son équipe ont fabriqué des pointes par photopolymérisation au bout de fibre monomode clivée [68] (Fig. 1.22.a). Ces pointes agissent comme des guides d'ondes et ont un diamètre identique au cœur de la fibre optique. Cette forme permet de réduire le volume au niveau du piège optique. Ils ont piégé une et plusieurs billes diélectriques d' $1 \mu\text{m}$ de diamètre avec une puissance de 10 mW en bout de fibre. En piégeant simultanément 4 particules, ils ont retrouvé l'effet d'auto-organisation "optical binding" décrit précédemment (Fig. 1.22.b).

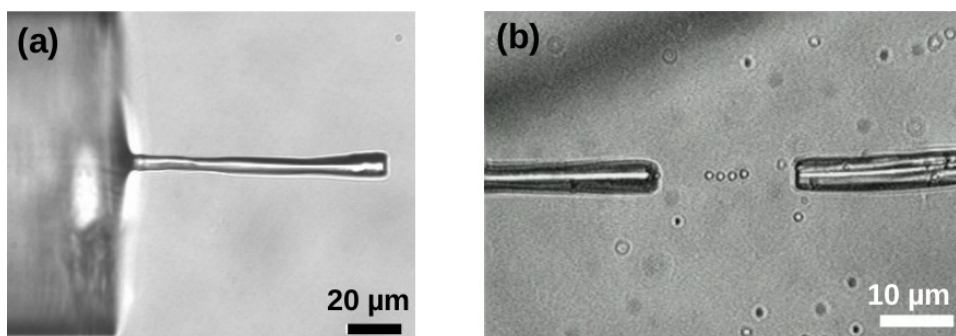


Figure 1.22: (a) Image d'une pointe conçue par photopolymérisation au bout d'une fibre optique. (b) Piégeage de 4 particules d' $1 \mu\text{m}$. [68]

Enfin, les pinces optiques à deux fibres peuvent être utilisées pour tourner et contrôler l'orientation de l'objet piégé [69, 70]. Pour cela, les fibres sont décalées latéralement afin de désaligner et de créer une distribution asymétrique des forces de diffusion des deux ondes contra-propagatives.

De cette manière, B. J. Black *et al.* ont développé un micro-moteur pour créer un flux microfluidique [69]. Ils ont piégé une structure composée de 7 microparticules de $6 \mu\text{m}$ de diamètre entre deux fibres optiques clivées avec une puissance de 20 mW . Le décalage latéral des fibres leur a permis de créer un mouvement de rotation de la microstructure.

X. Xu *et al.* ont démontré le contrôle de l'orientation d'un bâtonnet avec une pince optique constituée de deux fibres effilées [70]. Ils ont manipulé un bâtonnet en argent de 600 nm de diamètre et de 6,5 μm de long avec une puissance de 36 mW entre les pointes distantes de 23 μm . Cet objet peut être tourné puis stabilisé dans différentes orientations en changeant la position des fibres dans la direction transverse (Fig. 1.23.a). De cette manière, ils peuvent orienter le bâtonnet sur une plage de 152° en variant progressivement la position des pointes de -4 à 3,8 μm (Figs. 1.23.b-d).

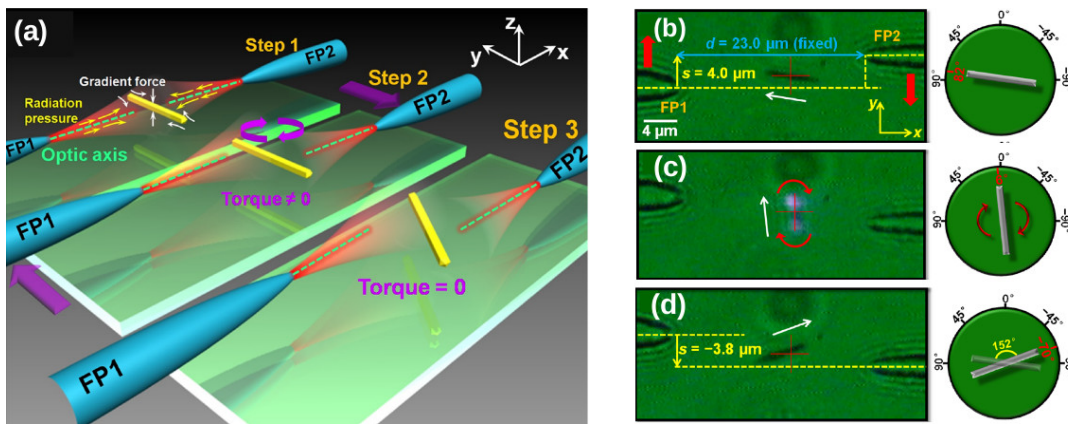


Figure 1.23: (a) Principe du changement d'orientation d'un bâtonnet dans un piège optique à 2 fibres effilées. (b)-(d) Images du bâtonnet orienté avec différents angles en changeant la position transverse des pointes. [70]

1.4.3 Notre approche

La pince optique que nous développons à l'Institut Néel est composée de deux fibres optiques monomodes nano-structurées en forme de pointes et placées en vis-à-vis. Elles sont fabriquées par gravure chimique. La distance qui les sépare est typiquement de 2 à 15 μm . De cette manière et comme expliqué précédemment, la particule en suspension est d'une part attirée au niveau de l'axe optique commun aux 2 pointes par les forces de gradients. D'autre part la particule est stabilisée entre les pointes à l'endroit où les forces répulsives de diffusion des deux ondes s'annulent (Fig. 1.24).

Nous obtenons ainsi un piégeage stable et reproductible de microparticules diélectriques en champ lointain avec des puissances optiques de l'ordre du milliwatt, comme nous le verrons dans le chapitre 3. Nous démontrons également que notre pince optique est efficace avec le piégeage de particules à l'échelle nanométrique, prouvant son efficacité (chapitre 4). De plus nous avons développé un dispositif permettant de caractériser le piégeage, notamment à partir du mouvement Brownien résiduel de la particule. Les forces optiques mises en jeu sont mesurées suivant différentes configurations de la pince, en particulier en fonction de la puissance lumineuse et de

la distance entre les pointes. L'influence de la taille de la particule sur l'efficacité de piégeage est aussi étudiée.

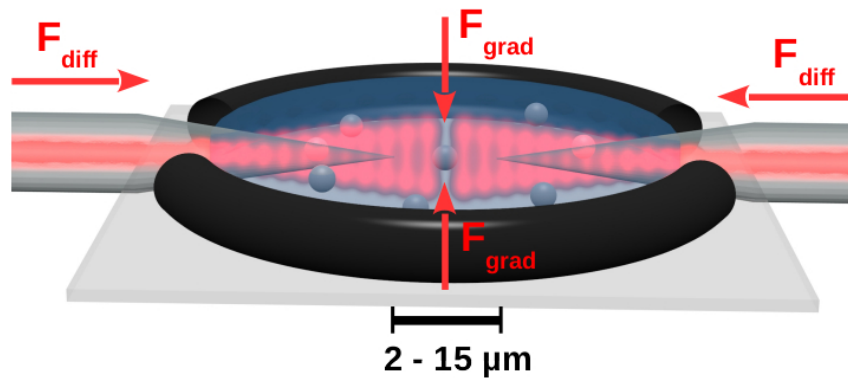


Figure 1.24: Vue schématique de notre approche à deux pointes optiques.

Cette pince est également développée dans la perspective de réaliser un piégeage optique en champ proche. Nous avons vu précédemment que le champ proche et plus particulièrement les pinces plasmoniques permettent d'améliorer considérablement les forces optiques et ce à faible intensité lumineuse. Dans sa configuration finale, notre pince est composée de deux pointes optiques recouvertes d'une couche opaque d'or et coupées aux extrémités afin d'obtenir des sources sub-longueur d'onde. Les deux pointes sont positionnées en face à face, très proche l'une de l'autre dans une gamme de 50 à 250 nm. Ainsi, nous créons une cavité plasmonique qui est ajustable en variant la distance entre les pointes de manière contrôlée. Nous avons mis en évidence des signes de couplage en champ proche [71]. Ces résultats seront détaillés dans le chapitre 5.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre introductif, nous avons commencé par détailler les principes fondamentaux de la pince optique. Nous avons décrit les forces optiques qui sont induites par la variation de la quantité de mouvement de la lumière lorsque celle-ci interagit avec la matière. Nous avons vu que ces forces sont calculées rigoureusement en utilisant le tenseur de contraintes de Maxwell. Il existe également des approximations permettant de décrire les forces et de comprendre leurs rôles dans le piégeage optique. En particulier nous avons expliqué que la force optique peut être décrite comme la somme de deux principales composantes : la force répulsive de diffusion et la force attractive de gradient.

Ensuite nous avons décrit quelques exemples utilisant la pince optique à focalisation de faisceau, telle que la pince optique holographique qui permet de piéger un très grand nombre de particules. Nous avons aussi vu quelques applications biologiques et médicales.

Puis nous avons détaillé deux autres grandes familles de pinces optiques :

- les pinces optiques en champ proche qui utilisent le champ évanescent pour confiner la lumière au delà de la limite de diffraction et exalter fortement la force de gradient.
- les pinces optiques fibrées en champ lointain qui utilisent les fibres optiques pour amener la lumière sur l'objet à piéger, permettant d'améliorer leur flexibilité et leur compacité.

Enfin, nous avons présenté notre approche de pince optique à deux fibres nanostructurées que nous développons actuellement à l'Institut Néel.

CHAPITRE 2

Dispositif expérimental

2.1	Pince optique	36
2.1.1	Positionnement des fibres	36
2.1.2	Injection et contrôle optique	38
2.1.3	Observation du piégeage	40
2.1.4	Particules étudiées	45
2.1.5	Environnement fluïdique	45
2.1.6	Spectroscopie de luminescence	48
2.2	Fibres optiques gravées en pointe	49
2.2.1	Fabrication	49
2.2.2	Caractérisation	52
2.3	Caractérisation du piégeage	56
2.3.1	Suivi des particules piégées	56
2.3.2	Statistique de Boltzmann	57
2.3.3	Étude fréquentielle : densité spectrale de puissance	60
2.3.4	Autocorrélation	62
2.3.5	Mesure du signal retour U_R	63

Dans ce chapitre, nous détaillerons le montage expérimental permettant le piégeage optique de particules en suspension. Nous verrons dans un premier temps ce qui compose notre pince optique, en parlant entre autre de l'injection du laser, l'observation du piège et l'environnement fluïdique dans lequel nous travaillons. Dans un second temps, nous expliquerons comment les fibres optiques en forme de pointes sont élaborées et caractérisées. Enfin, la dernière partie sera consacrée à la caractérisation des propriétés de piégeage.

Il est important de mentionner que cette expérience développée durant ces travaux de thèse est en constante évolution.

2.1 Pince optique

2.1.1 Positionnement des fibres

Les pointes sont positionnées sur des supports composés d'une rainure correspondant au diamètre de la fibre. Elles sont maintenues par des plaquettes en téflon vissées sur les supports. Ainsi, les deux pointes sont bien fixées et alignées entre elles (Fig. 2.1).

Ces supports sont installés sur deux jeux différents de moteurs indépendants qui peuvent translater dans les trois directions :

- Les moteurs piézoélectriques inertiels¹ possèdent des pas d'environ 30 nm. Leur champ d'action est très large (2,5 cm) ce qui est un grand avantage pour positionner les fibres grossièrement. Cela permet de donner une souplesse importante à la pince optique puisque les pointes peuvent être bougées de manière contrôlée sur une grande distance. Ces moteurs permettent également une approche rapide d'une pointe en face de l'autre.
- Les platines piézoélectriques² ont une résolution sub-nanométrique et un champ d'action de 50 μm . Elles permettent de balayer une pointe par rapport à l'autre de manière très précise afin d'étudier le champ électromagnétique émis et d'aligner au mieux les deux pointes.

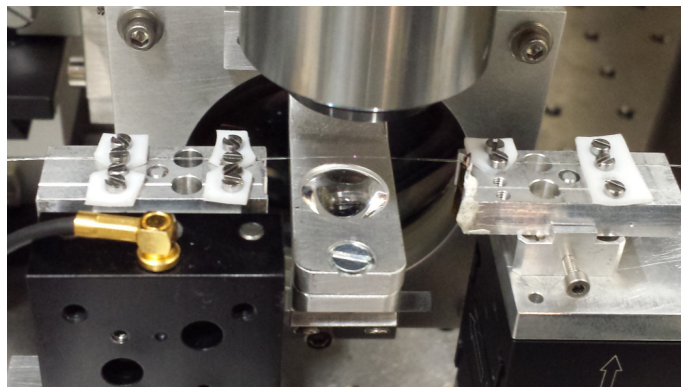


Figure 2.1: Cliché des pointes montées sur les moteurs piézoélectriques.

1. Mechonics MS 30

2. PI P620

Une troisième fibre peut être ajoutée sur un des supports, à côté d'une des pointes. Celle-ci est quant à elle clivée et placée en face d'un miroir pour créer une cavité Fabry-Perrot. De la lumière blanche est injectée dans cette fibre puis réfléchi par le miroir et par l'extrémité de la fibre (Fig. 2.2.a). Les réflexions détectées par un spectromètre¹ interfèrent et créent des franges d'interférences (Fig. 2.2.b). En calculant la transformée de Fourier de ce signal, nous obtenons la distance entre la fibre et le miroir.

Ce système est efficace pour des distances allant de 5 à 300 μm . Il permet également de stabiliser les pointes dans la direction axiale avec une grande précision. Nous avons mesuré une déviation de ± 5 nm en 5 heures.

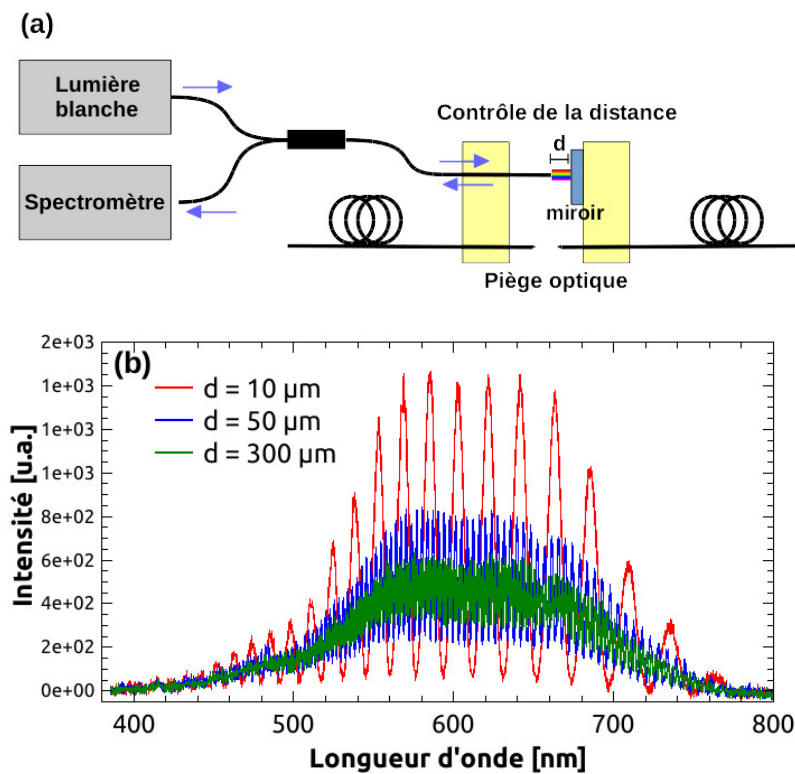


Figure 2.2: (a) Schéma présentant le système de contrôle actif de la distance entre les pointes. (b) Spectres de la lumière blanche pour plusieurs distances fibre - miroir d .

Ce système de contrôle actif permet donc de déterminer la distance relative entre les pointes. La distance absolue est en revanche plus compliquée à estimer. Le seul moyen est de rapprocher progressivement les pointes jusqu'à ce qu'elles se touchent.

1. Avantes Avaspec-2048

Ce contact est clairement visible sur les images du microscope ou sur les cartes d'intensité avec l'apparence de lignes. Nous constatons que le contact n'endommage pas les pointes si l'approche est très fine, avec des pas de 50 - 100 nm. Nous estimons que cette distance absolue est obtenue avec une précision de 50 nm.

2.1.2 Injection et contrôle optique

La source de lumière utilisée pour les expériences de piégeage est une diode laser fibrée émettant à $\lambda = 808$ nm avec une puissance maximale en sortie de 250 mW¹. Le fait que le laser soit fibré permet l'émission d'un mode Gaussien de symétrie circulaire, ce qui facilite l'injection dans les fibres. Nous avons choisi cette longueur d'onde pour plusieurs raisons :

- Elle est peu absorbée par l'eau, qui est notre milieu environnant. Cela évite des effets thermiques néfastes pour le piégeage.
- Elle permet d'utiliser les fibres optiques qui constituent notre pince puisqu'elle est toujours guidée, ce qui n'est plus le cas à 980 nm par exemple.
- Elle est suffisamment éloignée du visible, qui est la gamme d'émission des particules photo-luminescentes utilisées.
- Elle est loin de la bande d'absorption de l'or, dans le cas où nous utilisons des pointes métallisées.
- C'est une source peu onéreuse et nous possédons tous les composants optiques adaptés à cette longueur d'onde.
- Elle est adaptée pour des futures applications biologiques puisqu'elle est peu absorbée par les tissus des espèces biologiques.

La Figure 2.3 présente l'ensemble du banc optique utilisé pour les expériences de piégeage. La fibre de la diode est placée sur un port fibré auto-aligné² qui est réglé afin que le faisceau soit collimaté. La puissance du laser est modifiable en utilisant un jeu de densités optiques ainsi qu'une lame demi-onde couplée avec un polariseur. Le faisceau est ensuite séparé par un cube séparateur polarisant pour former deux bras symétriques. L'intensité relative des deux bras est ajustée à l'aide d'une seconde lame demi-onde placée devant le cube séparateur.

Dans chaque bras, le faisceau est à nouveau séparé par un séparateur de faisceau 90/10 ; 10% de la lumière est directement transmise dans une photodiode, permettant

1. Lumics, LU0808M250
2. Thorlabs, PAF-X-15-B

d'obtenir une intensité référence du laser ; 90% du faisceau est injecté dans la fibre de la pince par un micro-positionneur manuel à vis différentielle¹, d'une résolution sub-micrométrique. Cette précision est nécessaire afin d'aligner le faisceau dans le mode de la fibre monomode qui est d'environ 4 μm . Une lentille spécialement adaptée² est fixée sur le positionneur pour focaliser le faisceau dans le mode.

L'étape d'alignement est délicate mais très importante afin d'obtenir une intensité lumineuse suffisante pour entreprendre le piégeage de particules. Dans le but de limiter les étapes d'alignement lors du changement de pointes, un morceau de fibre clivée de part et d'autre est fixé sur le bloc et connecté à l'extrémité clivée de la pointe optique par un connecteur mécanique³. Une paire de lame demi-onde est également placée avant l'injection dans les fibres. Elles sont utilisées pour étudier les effets de polarisation sur le piégeage.

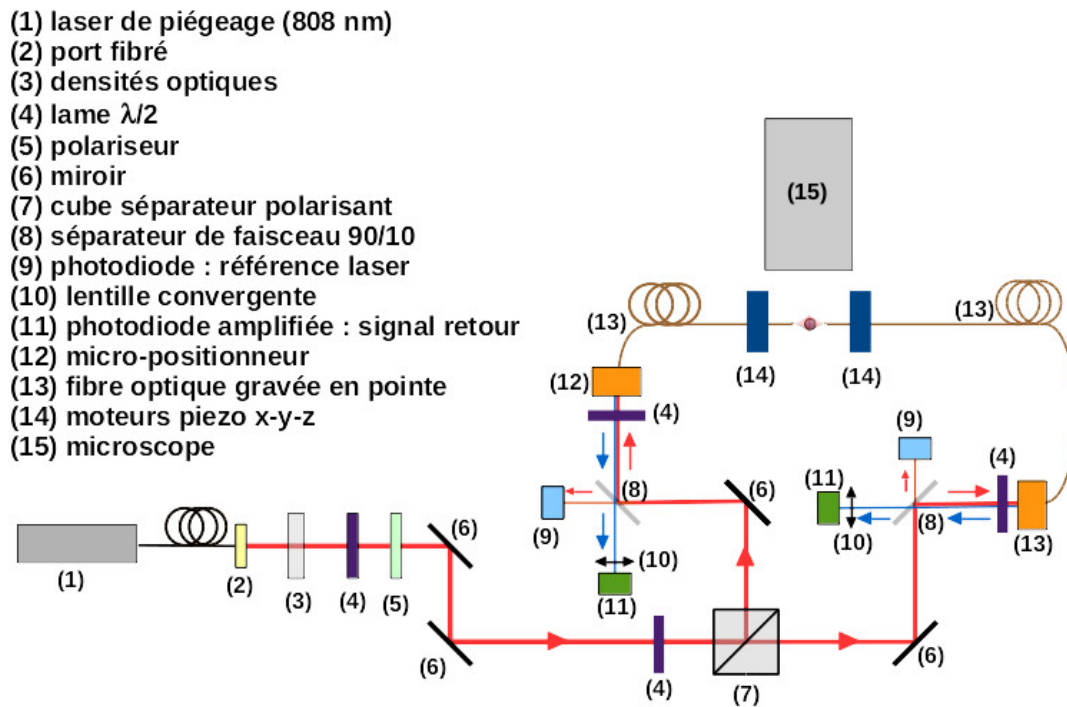


Figure 2.3: Montage expérimental du banc optique.

1. Thorlabs, MBT612D/M
 2. Thorlabs, C220 TMD-B
 3. Corning, camsplice assembly tool

Le séparateur 90/10 permet aussi de récupérer l'intensité retour des pointes de la pince. Ce signal retour que nous nommerons U_R est mesuré par des photodiodes¹ (n°11 sur la Fig. 2.3). Il permet :

- l'alignement optique des pointes, ce qui est essentiel pour les expériences de piégeage.
- de caractériser l'émission des pointes utilisées en effectuant des cartes en transmission en bloquant un des bras. Il est de ce fait possible d'observer des effets de champ proche, comme nous le verrons dans le dernier chapitre.
- d'obtenir des informations sur le piégeage. En effet, lorsqu'une particule est piégée, U_R est une superposition de lumière transmise d'une pointe par rapport à l'autre, de réflexion en bout de pointe et de réflexion par la particule piégée (Fig. 2.4). Nous verrons par la suite comment nous exploitons ces informations.

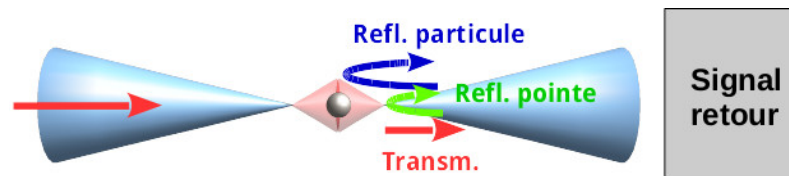


Figure 2.4: Schéma illustrant les contributions du signal retour U_R dans la pointe de droite mesuré par la photodiode.

Pour terminer, nous avons la possibilité de moduler l'intensité du faisceau en imposant un signal périodique. Pour cela, nous remplaçons la lame demi-onde se trouvant devant le cube séparateur (n°4 Fig 2.3) par un modulateur électro-optique². Celui-ci est composé d'un matériau biréfringent dont les propriétés optiques sont modifiées en appliquant un champ électrique. Il est modulé avec un générateur basse fréquence. Ce système permet donc de tourner la polarisation de l'onde et ainsi de moduler les intensités après le cube séparateur. La modulation est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique appliqué au milieu électro-optique. Dans le prochain chapitre, nous verrons quelle en est l'utilité.

2.1.3 Observation du piégeage

Nous avons développé un système d'observation du piégeage optique avec comme objectif d'obtenir une visualisation avec une bonne résolution spatiale et temporelle.

1. New Focus 2001
2. Linos, LM 0202 SW IR

Le montage doit aussi permettre d'injecter un laser d'excitation pour les particules photo-luminescentes.

Notre microscope assemblé à l'Institut possède une partie horizontale afin d'ajouter plus facilement des composants (par exemple des filtres) mais surtout, de réduire considérablement les vibrations. La Figure. 2.5 présente une photographie du microscope, où nous pouvons voir les deux systèmes d'éclairage : la lumière blanche et le laser d'excitation.

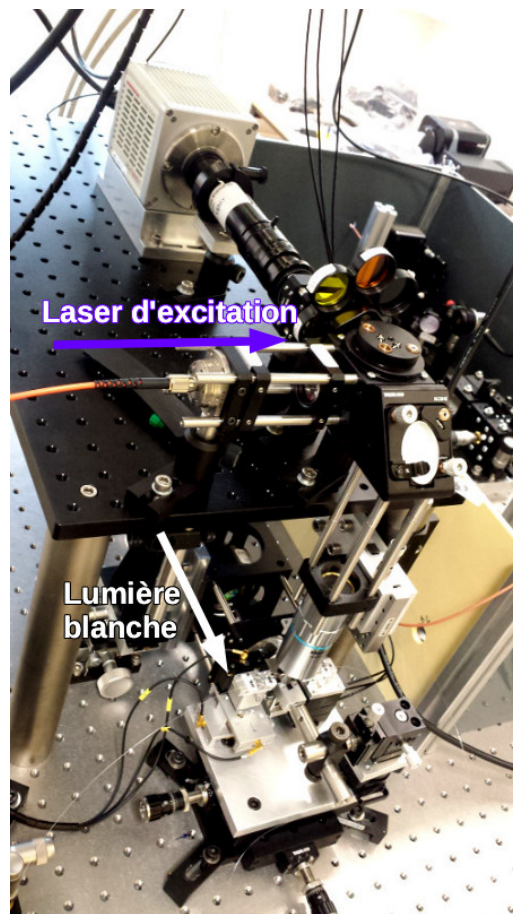


Figure 2.5: Photographie du microscope. L'échantillon peut-être éclairé avec une lumière blanche ou avec un laser d'excitation dans le cas où les particules sont lumineuses.

Nous utilisons un objectif de microscope¹ corrigé à l'infini, ayant un grossissement $\times 50$ et une ouverture numérique $NA = 0,55$. Nous avons notamment choisi cet objectif

1. Mitutoyo

pour sa très grande distance de travail (13 mm), nécessaire pour l'observation de nos échantillons. En contrepartie, il possède une faible profondeur de champ (0,9 μm) ce qui peut poser des problèmes pour la focalisation sur les particules en suspension. La résolution est de 0,5 μm , proche de la limite de Rayleigh. L'image de l'échantillon est focalisée sur le capteur de la caméra à l'aide d'un tube¹ composé de deux lentilles, d'un filtre et d'un diaphragme.

Nous avons choisi d'utiliser des caméras ayant des capteurs CMOS ("complementarity metal-oxide-semiconductor"). Contrairement aux capteurs CCD ("charge couple device"), le CMOS offre la possibilité de réduire la taille de la fenêtre de visualisation. Cela permet ainsi d'augmenter significativement la cadence de lecture (mesurée en images par seconde ou fps pour "frames per second"). Ce paramètre est primordial pour la caractérisation de notre piège, comme nous le verrons dans la partie suivante. Lors de cette thèse, nous avons commencé par travailler avec une certaine caméra², avant d'en acquérir une plus performante³.

- La première caméra réalise des images entières de 1280×1024 pixels avec une résolution de 58 nm/pixel et une cadence de lecture de 15 fps. Ce paramètre peut être augmenté jusqu'à 115 fps en réduisant la taille de l'image à 130×90 pixels. Les images sont converties en 8-bits.
- La seconde caméra peut faire des images possédant 2048×2048 pixels avec une résolution de 75 nm/pixel et une cadence de lecture de 30 fps. En réduisant les images à 100×100 pixels, nous pouvons atteindre des vitesses de lecture de plus de 300 fps. Les images peuvent être converties en 16-bits.

En comparant ces paramètres, nous remarquons que la seconde caméra est plus performante sur deux aspects principaux. D'une part elle est bien plus rapide, ce qui va être essentiel pour étudier le piégeage de particules ayant des mouvements à haute fréquence. D'autre part elle est plus sensible, ce qui va nous permettre de visualiser des nanoparticules.

Microscopie en champ clair et champ sombre

Pendant le montage du microscope, nous avons pris le soin de mettre en place une illumination en champ clair et en champ sombre. Le microscope en champ clair est la technique la plus simple et la plus fréquemment utilisée. L'échantillon est illuminé par dessous avec la lumière blanche⁴ qui est transmise jusqu'à la caméra. Les limitations

1. InfinityTube

2. Thorlabs, DCC1645C

3. Hamamatsu, Digital Camera, C11440

4. Dicon LED

de cette technique sont un faible contraste avec nos particules diélectriques qui ont un indice de réfraction proche de l'eau (1,58 pour le polystyrène contre 1,33 pour l'eau) et une assez faible résolution due au flou créé par la suspension hors du plan focal.

Le champ sombre est utilisé pour améliorer le contraste des pointes et surtout des particules en solution. Le principe est de bloquer la lumière directe et de détecter uniquement les rayons diffusés et déviés par l'échantillon. Ainsi, les pointes et les particules apparaîtront claires alors que le fond sera sombre à l'image (inserts Fig. 2.6). Pour que cette technique soit efficace, il faut que l'ouverture numérique de l'illumination soit supérieure à l'ouverture numérique de l'objectif de microscope. Il est donc nécessaire d'étendre un maximum le faisceau. Cette contrainte pose un problème d'encombrement puisqu'il y a peu d'espace sous la pince.

Des simulations de design optique¹ ont été réalisées par David Jegouso afin de déterminer les lentilles adaptées, en prenant en compte les contraintes géométriques imposées par la pince (Fig. 2.6). La lumière blanche, qui est très divergente en sortie, est collimatée par la lentille L1 avant d'être étendue avec une paire de lentilles divergente et convergente (L2 et L3). Le faisceau est ensuite fortement focalisé par les lentilles L4 et L5 sur notre échantillon, après avoir été réfléchi par un miroir. La lumière est finalement transmise à travers l'échantillon et collectée par l'objectif de microscope. Pour passer en champ sombre, nous ajoutons un cache entre les lentilles L3 et L4, à l'endroit où le faisceau est étendu et collimaté.

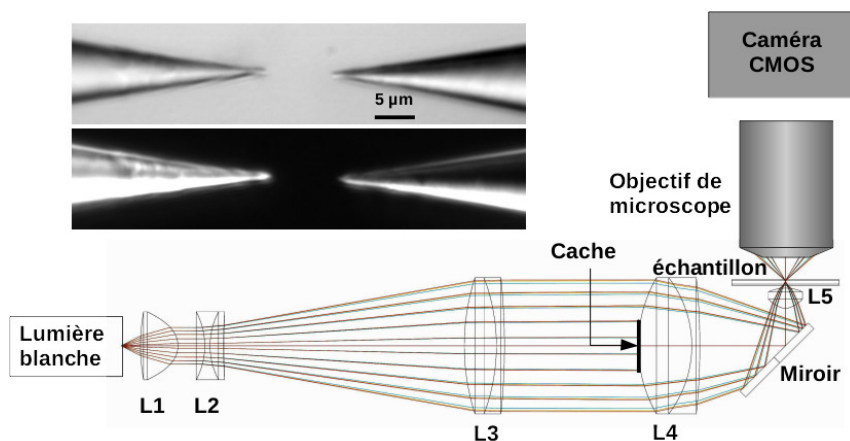


Figure 2.6: Simulation du chemin optique de la lumière blanche placée sous le microscope. Inserts : imagerie des pointes en champ clair (au dessus) et en champ sombre (en dessous).

1. logiciel Zemax

Microscopie en photo-luminescence

Malgré une amélioration possible du contraste avec l'utilisation du champ sombre, la microscopie optique possède une résolution ultime qui est limitée par la diffraction de la lumière ($\sim \lambda/2$). Nous avons vu précédemment que la résolution de notre microscope est d'environ 500 nm. Pour pouvoir visualiser des particules de plus petite taille, il est donc nécessaire de trouver d'autres moyens, tel que la microscopie en fluorescence.

Le système d'excitation des particules luminescentes est schématisé sur la Figure 2.7. Le laser d'excitation est choisi en fonction du type de particules étudiées. Nous utilisons un laser émettant à 457 nm pour les particules de $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$, à 980 nm pour les particules de $\text{NaYF}_4:\text{Er}/\text{Yb}/\text{Gd}$ et à 532 nm dans le cas où nous voudrions travailler avec les nano-diamants. Le faisceau est dirigé et focalisé dans une fibre optique multimode ayant un large cœur de 400 μm , afin d'injecter le maximum d'intensité lumineuse. L'utilisation de la fibre se justifie pour une question d'encombrement et afin de faciliter l'alignement lorsque nous changeons le laser d'excitation.

La fibre est ensuite placée sur un port fibré auto-aligné afin de collimater le faisceau. La taille du faisceau est agrandie et adaptée au diamètre d'entrée de l'objectif du microscope par une paire de lentilles. Le laser est alors réfléchi par un miroir dichroïque et il est focalisé de manière optimale par l'objectif. Les particules excitées émettent de la lumière principalement dans le visible qui est collectée par l'objectif, transmise à travers le miroir dichroïque et imagée par la caméra. Un jeu de filtres est ajouté permettant de retirer la lumière parasite tel que le reste du laser de pompe.

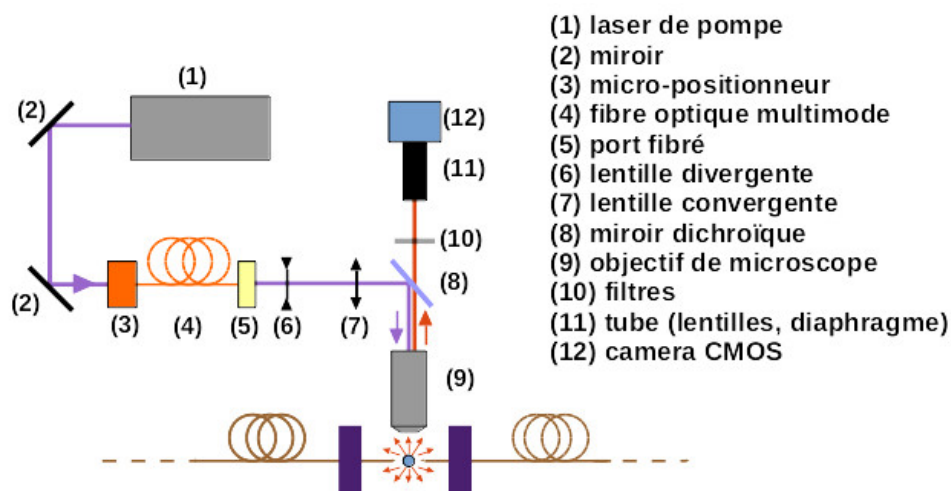


Figure 2.7: Montage expérimental de l'excitation des particules luminescentes.

2.1.4 Particules étudiées

Durant cette thèse, nous avons étudié différents types de particules. Nous pouvons distinguer quatre grandes catégories :

- Des particules sphériques en polystyrène ayant un diamètre d'1 μm . Ces particules commerciales¹ sont les premières utilisées pour les expériences de piégeage.
- Des particules luminescentes de YAG :Ce³⁺ quasi-sphériques que j'ai synthétisé pendant ces travaux au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (PMC, Polytechnique, Palaiseau), partenaire du projet FiPlaNT. Ces particules mesurent environ 300 nm de diamètre et sont utilisées comme transition entre les micro et les nanoparticules.
- Des particules luminescentes de YAG :Ce³⁺ de 60 nm de diamètre. Elles ont été synthétisées par Lucie Devys au laboratoire PMC. Elles sont utilisées dans le but d'évaluer les limites de notre approche de pince optique fibrée.
- Des particules luminescentes de NaYF₄ :Er/Yb/Gd en forme de nano-batônnets. Elles sont réalisées par Maud Thiriet à PMC dans le cadre de sa thèse. Ces particules anisotropes sont exploitées pour étudier leur comportement au sein du piège et pour réaliser des expériences de spectroscopie de luminescence.

Toutes ces particules se trouvent en suspension dans l'eau. Leur concentration est un paramètre très important pour les expériences de piégeage. Il est nécessaire de trouver un compromis entre une concentration ni trop faible ni trop élevée. S'il y a trop peu de particules, la probabilité qu'une particule arrive au bon endroit entre les pointes serait faible et les expériences de piégeage deviendraient longues et délicates. Au contraire si la solution est trop concentrée en particules, d'une part il y aurait de grandes chances que les particules adhèrent au bout des pointes et d'autre part, le piégeage serait trop souvent perturbé par l'arrivée de plusieurs particules. Nous estimons que la concentration idéale des particules est d'environ 0,2 mg ml⁻¹.

2.1.5 Environnement fluide

Toutes les expériences de piégeage ont été réalisées en milieu aqueux. C'est une nécessité puisque les forces d'adhésion dans l'air (forces capillaires et de Van der Waals, notamment) surpassent de plusieurs ordres de grandeur les forces optiques de piégeage qui sont de l'ordre du piconewton.

Nous avons donc développé des systèmes permettant de travailler avec des particules en suspension dans un milieu liquide. L'objectif est de trouver un système stable et sans fuite permettant d'immerger les deux pointes sans risque de les abîmer.

1. Corpuscular, Microspheres-Nanospheres

Système statique

Au début de cette thèse, nous avons réalisé les premières expériences de piégeage en utilisant le système le plus trivial : une goutte de particules en suspension posée sur une lamelle de verre. De cette manière, nous avons piégé optiquement pour la première fois des particules de polystyrène d' $1\ \mu\text{m}$ de diamètre pendant quelques minutes. Dans cette configuration, le piège est très instable dû à l'évaporation rapide de la goutte qui entraîne d'importants mouvements de convection.

Nous avons alors changé de système en réalisant une cuve constituée d'un joint en caoutchouc. Il est coupé en deux pour pouvoir insérer les pointes et les deux morceaux sont placés entre deux fines lamelles de verre. Enfin le système est rendu étanche avec de la graisse à vide, permettant de travailler pendant plusieurs heures dans un système stable, sans évaporation (Fig. 2.8). Ce système présente l'avantage d'être simple et rapide à réaliser tout en étant très efficace.

L'ensemble est fixé sur une plateforme qui peut se translater dans les trois directions et s'incliner suivant deux axes de manière précise. Cela permet d'une part de placer facilement la cuve en ajustant les ouvertures du joint avec les fibres. D'autre part, le système étant décorrélié de l'alignement des pointes, il est possible de sélectionner les particules visibles à la caméra que nous souhaitons piéger. Ce dernier point est important puisqu'il nous permet de rester actif pendant les expériences de piégeage et de ne pas attendre qu'une particule passe suffisamment proche des pointes pour être attrapée.

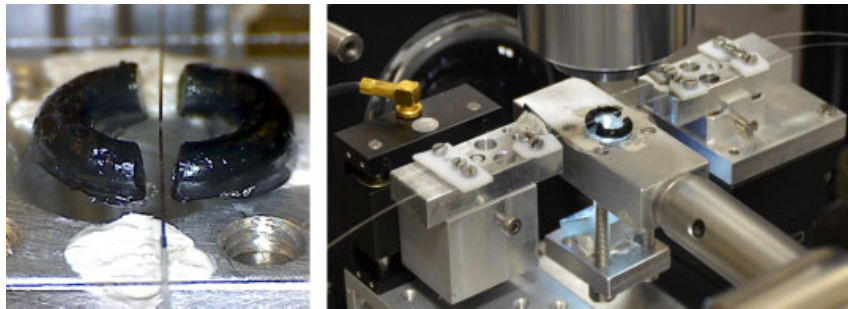


Figure 2.8: Cliché de notre système statique en milieu liquide.

Système dynamique : micro-fluidique

Dans le but de contrôler la trajectoire des particules, nous avons développé un système micro-fluidique. Cela permet d'une part, de guider plus facilement les particules vers le piège et d'autre part, d'effectuer des mesures de forces optiques de manière directe. Enfin, ce système permet d'illustrer que notre pince peut s'intégrer à d'autres environnements de type "lab-on-chip" utilisés par exemple en biophysique.

Pour contrôler le flux du liquide à l'intérieur du canal, nous utilisons un pousse seringue¹. Cet appareil comporte une partie mobile qui bouge à une vitesse que nous définissons, sur laquelle est fixé le piston de la seringue. Le débit du flux instauré est défini par la vitesse du piston, en connaissant les dimensions de la seringue utilisée. Les débits utilisés sont typiquement de l'ordre de $50 - 100 \mu\text{l min}^{-1}$, entraînant les particules avec des vitesses allant de 70 à $150 \mu\text{m s}^{-1}$. Le flux peut être appliqué dans les deux directions du canal en poussant ou en tirant le piston.

Le canal fluïdique est fabriqué en polydiméthylsiloxane (PDMS). Ce matériau est un des plus populaires dans ce domaine d'application pour plusieurs raisons : il est assez simple à mettre en œuvre, inerte, à bas coût, facile à usiner mais surtout il est optiquement transparent dans le visible.

Le PDMS est composé de silicium, d'oxygène, de carbone et d'hydrogène disposés comme sur le schéma de la Figure 2.9.a, le nombre de répétitions du monomère $\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{O}$ étant représenté par n . Pour obtenir ce matériau, deux composants sont mélangés - le polymère non-réticulé et l'agent de réticulation - dans une proportion 10 :1. L'ensemble est ensuite coulé sur le moule puis dégazé dans une chambre sous vide afin d'enlever les bulles d'air apparues pendant le mélange, bulles qui pourraient induire de la diffusion et donc perturber l'observation. Enfin, le polymère est chauffé à 130°C pendant environ 10 minutes pour accélérer le processus de réticulation.

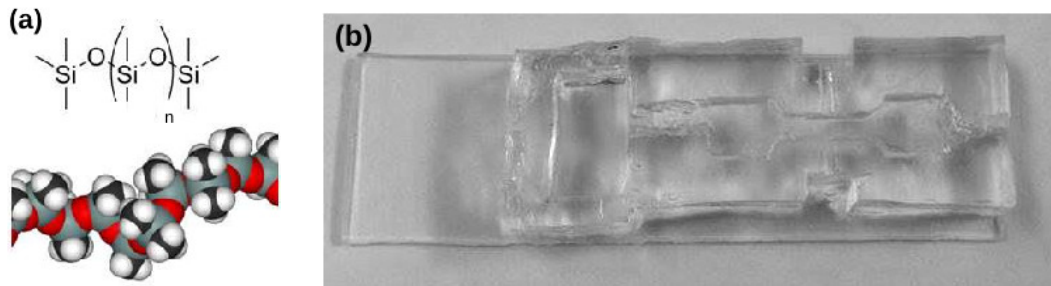


Figure 2.9: (a) Représentation d'une molécule de PDMS [72]. (b) Cliché du canal en PDMS.

Le canal est obtenu à partir d'un moule. Nous avons utilisé deux approches pour le réaliser. La technique standard dans le domaine de la micro-fluidique est l'utilisation de la lithographie optique. Dans ce procédé, nous utilisons un film ou une résine photosensible sur lequel est placé un masque représentant la forme du canal souhaité. L'ensemble est insolé sous une lampe UV puis développé avec du carbonate de sodium. Nos tests ont démontré que cette technique n'était pas adaptée à nos besoins

1. Harvard Apparatus, Pump 11 Elite

qui sont d'obtenir des canaux suffisamment profonds pour pouvoir insérer les fibres optiques.

Le moule a finalement été fabriqué par l'atelier mécanique en usinant une pièce en téflon dans les dimensions souhaitées : $(19 \times 1 \times 2)$ mm³. Une rainure est réalisée en son milieu pour insérer un tube capillaire. Lors du moulage, il permet d'obtenir les ouvertures nécessaires pour insérer les fibres de la pince. Le système contenant le canal est enfin découpé dans les dimensions souhaitées, percé à l'entrée pour connecter le tuyau lié à la seringue et percé en sortie pour laisser couler le fluide (Fig. 2.9.b).

Précisons que pour les expériences utilisant un flux, il est nécessaire d'insérer les fibres optiques dans des tubes capillaires adaptés à leurs diamètres. Cela permet de rigidifier les fibres et de rendre le système beaucoup plus stable. Sans ces capillaires, les pointes sont entraînées par le flux appliqué, provoquant un désalignement néfaste pour le piégeage.

2.1.6 Spectroscopie de luminescence

Nous avons réalisé des mesures de spectroscopie de luminescence sur des particules piégées optiquement. Pour ce faire, le dispositif expérimental détaillé sur la Figure 2.3 est légèrement modifié avec l'implantation d'un spectromètre¹ (Fig 2.10). Celui-ci est couplé à une caméra EMCCD² très sensible et rapide. Elle est refroidie jusqu'à -70 °C afin de diminuer le bruit thermique. Les spectres peuvent être réalisées sur une plage de longueur d'onde allant de 0 à 1400 nm, avec une précision de $\pm 0,25$ nm.

Le spectromètre est connecté à l'un des bras du montage par un coupleur fibré 2×2 ³. Une des pointes servant pour le piégeage est donc aussi utilisée pour collecter la luminescence émise par les particules étudiées. Un jeu de filtres coupe-bande⁴ et passe-bas⁵ est positionné devant l'entrée du spectromètre. Les filtres sont choisis afin d'éliminer l'intensité du laser tout en conservant la luminescence émise par les nanoparticules.

1. Princeton Instruments, Acton SP2150i

2. Princeton Instruments, ProEM 1600²

3. Thorlabs, FC850-40-50-APC

4. Thorlabs, NF808

5. Thorlabs, FESH0750

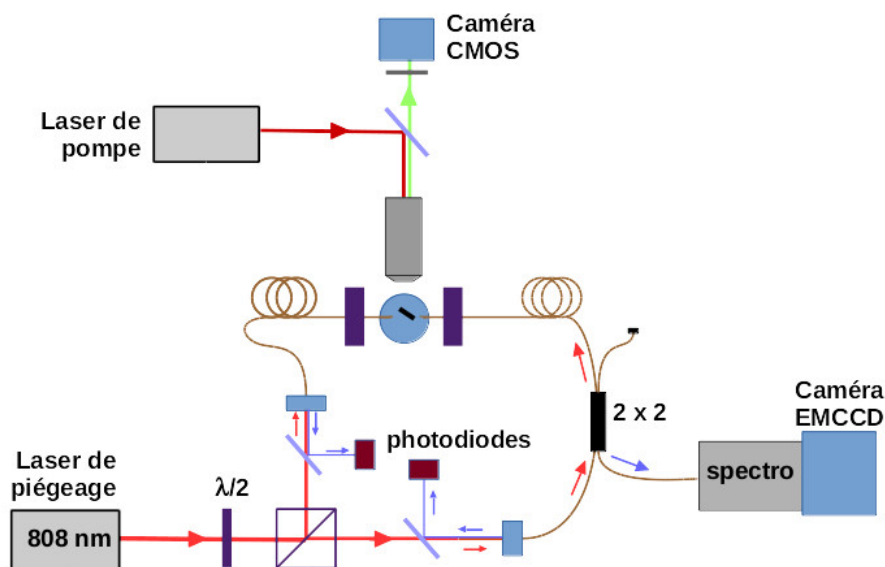


Figure 2.10: Schéma du dispositif expérimental avec l'intégration du spectromètre.

2.2 Fibres optiques gravées en pointe

La fibre optique effilée est l'élément principal de notre pince optique. La qualité de celle-ci influera directement sur le champ électromagnétique émis et donc sur la qualité du piège optique des particules. Les pointes sont fabriquées à l'Institut Néel par Jean-François Motte. Le fait qu'elles soient réalisées en interne est un grand avantage puisqu'elles peuvent être rapidement adaptées en fonction des besoins que demande l'expérience à réaliser. Ce savoir-faire a été développé dans l'équipe notamment pour réaliser de la microscopie optique à balayage en champ proche [73] (SNOM pour "Scanning Near-field Optical Microscope") et le microscope optique à balayage interférentielle [74] (iSOM pour "interferometric Scanning Optical Microscope").

2.2.1 Fabrication

Les pointes diélectriques sont obtenues à partir de fibres optiques dont une extrémité est gravée par voie chimique. La fibre optique utilisée est monomode (pour une longueur d'onde comprise entre 630 et 860 nm), à cœur de silice pure et à saut d'indice¹. Elle est composée de trois zones concentriques : le cœur de 3,5 μm de

1. Nufern S630-HP

diamètre qui constitue la partie centrale, la gaine optique (“cladding” en anglais) qui entoure le cœur et sert à confiner la lumière dans celui-ci, et la gaine mécanique en plastique qui protège la fibre et la rend plus flexible. L’indice de réfraction du cœur étant légèrement supérieur à celui de la gaine optique, l’onde y est guidée par réflexion totale interne à l’interface des deux matériaux.

Il existe quatre principales méthodes pour réaliser des fibres optiques effilées :

- L’étirage séquentiel à chaud [75]
- La gravure chimique [76]
- Le polissage mécanique [77]
- La photopolymérisation [78]

Les deux premières techniques citées sont les plus anciennes et les plus couramment utilisées. L’étirage à chaud consiste à faire fondre la fibre sous l’effet d’un laser CO₂ et à tirer mécaniquement jusqu’à rupture et ainsi obtenir deux pointes. L’angle de la pointe peut être contrôlé en modifiant la puissance du laser ou la force d’étirage. Une image réalisée par microscopie électronique à balayage (MEB) d’une pointe conçue par fusion est présentée sur la Figure 2.11.a.

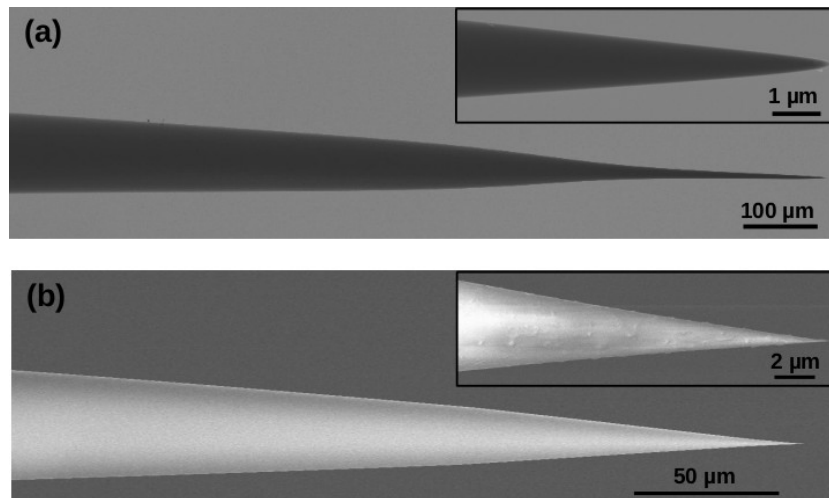


Figure 2.11: Image MEB d’une pointe éfilée par fusion-étirage (a) et par gravure chimique (b). Inserts : Zoom du bout des pointes.

Nous lui préférons la gravure chimique qui est une technique très bien maîtrisée à l’Institut Néel. Cette technique présente les avantages suivants : le cœur de la fibre n’est pas modifié et le matériau à haut indice est présent jusqu’à l’apex ; l’angle de la pointe est constant et suffisamment grand pour assurer une bonne transmission

optique. Il y a cependant quelques inconvénients comme l'état de surface qui est assez rugueux et la forme qui n'est parfois pas réellement conique.

La pointe est obtenue en immergeant la fibre optique dans une solution d'acide fluorhydrique (HF) à 40 % qui est connue pour dissoudre la silice. Au contact du liquide, un ménisque concave se forme dont la hauteur est proportionnelle au diamètre de la fibre. Celui-ci diminue au cours de la gravure ce qui entraîne la diminution de la taille du ménisque. On obtient ainsi une fibre de forme conique très effilée. Les temps de gravure sont d'environ 2 h. Une pointe obtenue par gravure chimique est présentée sur la Figure 2.11.b. Le diamètre en bout de pointe est d'environ 60 nm, l'angle est constant et mesure environ 15° .

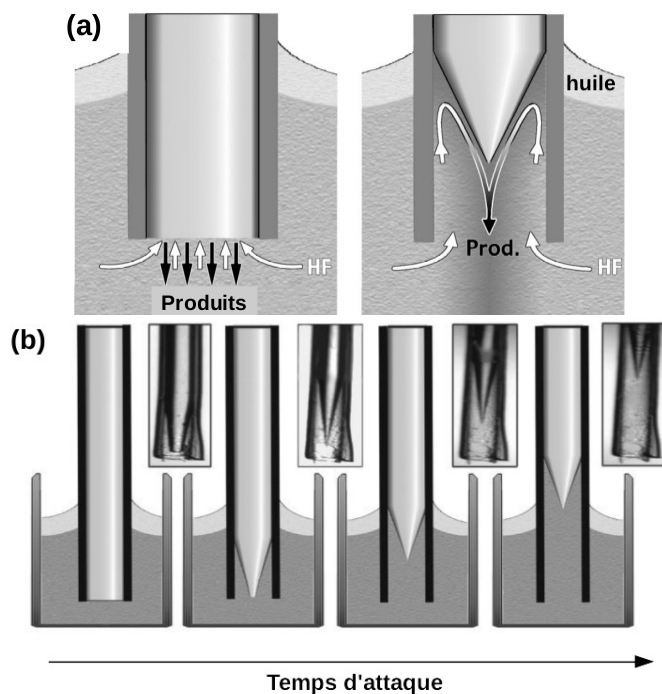


Figure 2.12: (a) Mécanisme de convection impliqué dans la gaine plastique lors d'une gravure par "tube etching". (b) Formation d'une pointe par tube etching au cours du temps. [76]

Les pointes réalisées par attaque chimique classique étant très sensibles aux conditions expérimentales telles que la température, l'hygrométrie et les vibrations, nous gardons partiellement la protection en plastique autour de la fibre immergée. Ce procédé est appelé "tube etching" en anglais. La gaine étant imperméable à l'HF, celui-ci remonte par capillarité le long des parois pendant l'attaque (Fig. 2.12). Les mouvements de convection créés permettent d'obtenir des pointes dont l'apex se trouve sur l'axe de révolution.

Les vapeurs d'acide fluorhydrique étant très corrosives, une couche d'huile de silicone est déposée à la surface du bain d'acide. En effet, l'acide fluorhydrique est un composé très toxique et il doit être manipulé avec d'importantes précautions. Le processus détaillé de cette méthode peut-être trouvé dans la thèse d'Aurélien Cuche [79].

2.2.2 Caractérisation

Spectre angulaire d'émission

Les pointes peuvent être caractérisées par mesures angulaires de l'intensité lumineuse émise en champ lointain. Un laser He-Ne émettant à 632 nm est injecté dans la pointe à caractériser à l'aide d'un micro-positionneur. Une photodiode montée sur le bras du goniomètre tourne autour de la pointe sur environ 300° en aller-retour à l'aide d'un moteur pas à pas. La photodiode mesure donc l'intensité émise par la pointe en fonction de l'angle θ (Fig. 2.13.a).

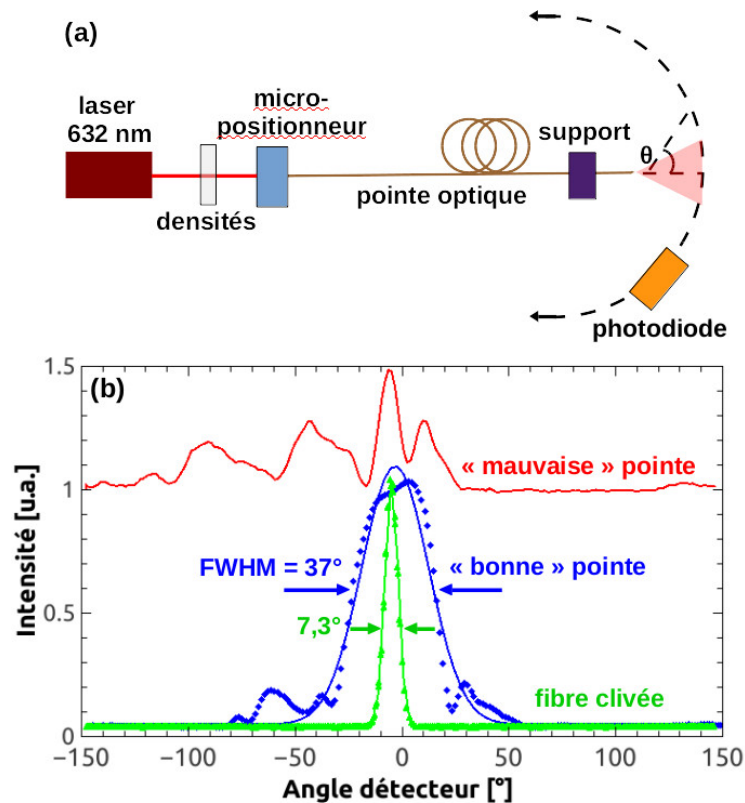


Figure 2.13: (a) Schéma du principe de fonctionnement du goniomètre. (b) Émission angulaire d'une fibre clivée ainsi que d'une "bonne" et d'une "mauvaise" pointe.

Cet outil permet de vérifier rapidement la qualité de la pointe. Une pointe de bonne qualité émet un signal régulier de forme Gaussien alors qu'une pointe de mauvaise qualité aura un profil d'émission irrégulier (Fig 2.13.b). Nous mesurons typiquement une largeur à mi-hauteur (FWHM) du profil d'émission de la pointe de $\text{FWHM}_p = 35 \pm 3^\circ$. Cette valeur est 5 fois plus large que celle d'une fibre clivée ($\text{FWHM}_c = 7^\circ$). Cela montre que le faisceau émis par la pointe est plus divergent, comme souhaité.

Dans le cas où la pointe à caractériser est métallisée, cette technique permet également de déduire la largeur de l'ouverture de la pointe à partir de la largeur du pic d'émission, comme nous le verrons dans la partie **5.2.3**.

Microscope Electronique à Balayage

Le microscope électronique à balayage (MEB)¹ est également une excellente technique pour caractériser les pointes. Comme nous l'avons vu sur la Figure 2.11.b, elle permet de contrôler l'état de surface, de mesurer l'angle et le diamètre de l'extrémité de la pointe. Nous pouvons aussi utiliser le MEB après les expériences de piégeages pour vérifier l'état général de la pointe mais aussi pour imager les particules qui ont adhéré pendant le piégeage. Sur la Figure 2.14, la pointe est en bonne état mais plusieurs particules d'1 μm de diamètre ont adhéré.

Afin d'éviter des effets de charge qui peuvent dégrader l'observation, il faut bien prendre soin de ne pas utiliser une énergie trop importante du faisceau d'électron. Nous utilisons typiquement une énergie de 1 kV lorsque la pointe n'est pas métallisée.

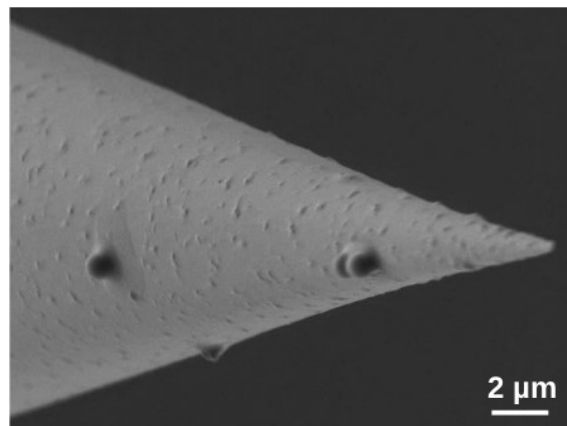


Figure 2.14: Image MEB (inclinée à 60°) d'une pointe optique avec l'adhésion de particules d'1 μm .

1. Zeiss-Ultra +

Cartes de transmission

L'émission lumineuse des pointes peut également être étudiée en réalisant des cartes en transmission dans le plan transverse à l'axe des fibres. Pour cette mesure, le faisceau est injecté dans une pointe et la seconde collecte la lumière transmise en la balayant dans le plan transverse y, z (Fig 2.15.a). Les cartes obtenues en transmission révèlent des spots de forme Gaussien, pour des pointes de bonne qualité. Des exemples typiques de cartes d'intensité en transmission obtenues pour des pointes de bonne et de mauvaise qualité se trouvent sur les Figures 2.15.b-c.

Ces mesures sont d'abord réalisées dans l'air pour les premiers tests afin de faciliter l'expérience, puis dans l'eau pour se rapprocher des conditions expérimentales de piégeage.

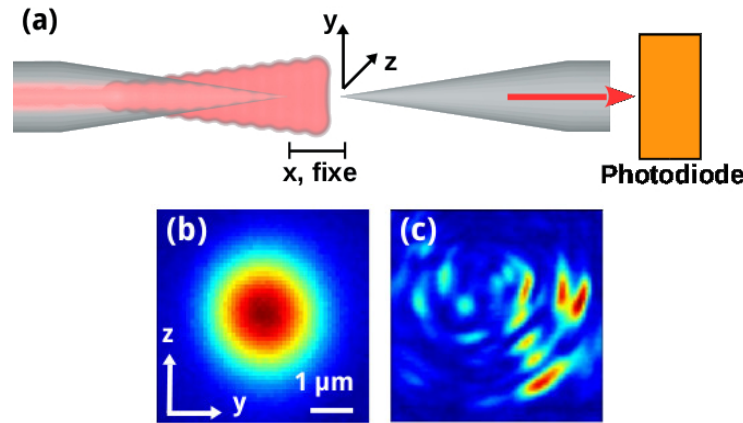


Figure 2.15: Principe des mesures en transmission (a). Exemple de cartes en transmission dans l'air pour une "bonne" (b) et une "mauvaise" pointe (c).

Le profil des cartes d'intensité est ajusté avec une fonction Gaussienne :

$$I(r) = I_0 \cdot e^{-\frac{2(r-r_0)^2}{w^2}} \quad (2.1)$$

avec I_0 l'amplitude et w la largeur du faisceau que l'on appelle communément "waist" en anglais.

Il est important de noter que les cartes en transmission mesurées correspondent à la convolution entre la fibre émettrice et celle réceptrice. De ce fait, afin d'obtenir la taille du spot de l'émission d'une pointe, il est nécessaire de la corriger en prenant en compte la seconde fibre. Le waist corrigé w du spot correspond à la déconvolution de deux fonctions Gaussiennes et s'écrit de la façon suivante :

$$w = \sqrt{\tilde{w}^2 - w_0^2} \quad (2.2)$$

avec \tilde{w} le waist mesuré et w_0 l'ouverture optique de la seconde fibre. Pour deux pointes identiques, w_0 s'écrit : $w_0 = w^{min}/\sqrt{2}$, w^{min} étant le waist mesuré à une très faible distance entre les pointes (moins de 100 nm).

Les propriétés d'émission des pointes sont déterminées en effectuant une série de mesures en variant la distance entre les pointes. Les distances sont mesurées à l'aide de la cavité Fabry-Perrot formée par la fibre clivée et le miroir, comme expliqué dans la partie 2.1.1. La taille et l'intensité du faisceau émis sont mesurées dans l'air et dans l'eau pour des distances entre les pointes allant de 0,5 μm et 30 μm .

À très faible distance, nous mesurons une largeur de spot d'environ 900 nm dans les deux milieux et celle-ci croît linéairement avec la distance (Fig 2.16.a). La pente de la droite nous donne directement l'angle d'émission de la pointe émettrice et permet de calculer son ouverture numérique : $N.A. = n \sin \theta/2$. Nous trouvons classiquement un angle d'ouverture d'environ 18° correspondant à une ouverture numérique de 0,16 dans l'air. Le faisceau est beaucoup moins divergent dans l'eau dû à son indice de réfraction plus important. Dans ce cas, l'angle d'émission est d'environ 8° et $N.A. = 0,09$.

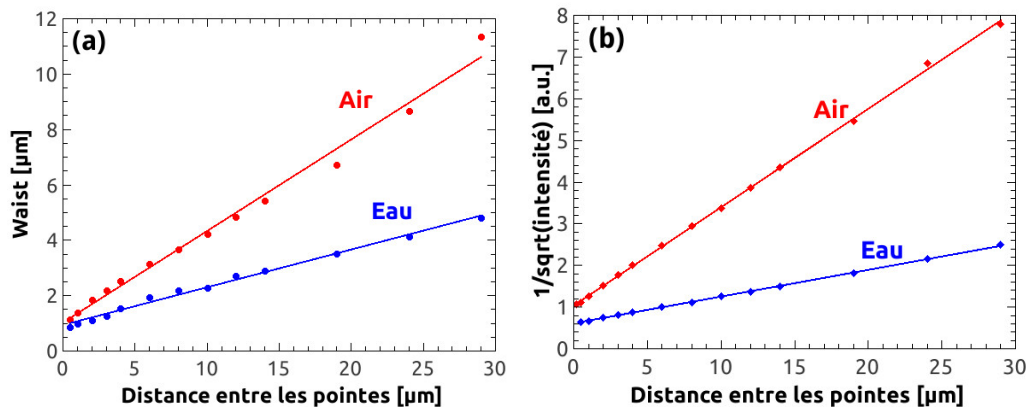


Figure 2.16: Largeur (a) et intensité (b) du faisceau mesurées à partir des cartes d'intensité en transmission dans l'air et dans l'eau, en fonction de la distance entre les pointes.

L'amplitude de l'intensité transmise est également étudiée en fonction de la distance. L'inverse de la racine carrée de l'intensité augmente linéairement avec la distance (Fig. 2.16.b). Cela s'explique du fait que le flux lumineux total reste constant alors que la largeur du faisceau croît linéairement.

Enfin, nous constatons que l'intensité mesurée est environ trois fois plus grande dans l'eau que dans l'air. Ce résultat est important pour les expériences de piégeage. Il nous permet de calibrer la puissance lumineuse dans l'eau. Toutes les valeurs de puissance données par la suite sont mesurées à la sortie d'une pointe dans l'air et corrigées dans l'eau par un facteur $\sqrt{3}$.

Pour résumer, les fibres optiques gravées par voie chimique présentent une extrémité de forme conique d'angle constant d'environ 15° et dont l'apex mesure 60 - 100 nm. Ces pointes émettent un faisceau Gaussien avec un waist minimal de 900 nm. Les mesures de lumière transmise entre deux pointes nous permettent de corriger la puissance optique dans l'eau, qui est un paramètre très important pour le piégeage optique.

2.3 Caractérisation du piégeage

Une fois la particule piégée optiquement, nous souhaitons caractériser notre pince et déterminer son efficacité. Pour cela, nous étudions le mouvement Brownien résiduel de la particule ainsi que le signal retour U_R (détaillé Fig. 2.4). Afin d'illustrer mes propos, un exemple concret est présenté dans cette partie. Une particule d'1 μm de diamètre en polystyrène est piégée avec une distance de 10 μm entre les pointes et une puissance optique de 25,3 mW.

2.3.1 Suivi des particules piégées

Pendant le piégeage de la particule, nous enregistrons des vidéos à l'aide de notre caméra du microscope avec une fréquence de lecture typique allant de 100 à 300 fps. Une vidéo standard contient environ 5000 images. Pour obtenir une vidéo de qualité, il est nécessaire que la fréquence de lecture de la caméra soit supérieure à la dynamique de la particule piégée. Cette dynamique est mesurée par la fréquence de coupure de la particule, que nous expliquerons par la suite. Dans le cas contraire, la particule n'apparaîtrait pas net et il y aurait l'apparition de traînées sur les images. Par conséquent, la caractérisation du piégeage deviendrait imprécise.

Nous avons développé des programmes sous le logiciel libre Scilab qui permettent de suivre automatiquement la particule piégée ("tracking") à partir des vidéos enregistrées. Trois techniques différentes ont été étudiées :

- le tracking par pondération : la particule doit apparaître claire par rapport au fond. L'image est binarisée en définissant un seuil de niveau de gris à partir duquel la particule apparaîtra blanche, le reste étant noir. Le centre de gravité du spot blanc est alors calculé et sa position est enregistrée.

- le tracking par ajustement Gaussien direct : La valeur des pixels de chaque ligne et de chaque colonne de l'image sont sommées entre elles. Nous obtenons ainsi le profil de l'image dans les deux directions (axiale et transverse par rapport à l'axe des pointes optiques). Ces profils sont ajustés avec une fonction Gaussienne (Fig. 2.17.a). La position de la particule piégée correspond alors à l'endroit où l'amplitude est maximale. Cette méthode est bien adaptée pour le suivi d'une particule individuelle.
- le tracking par ajustement Gaussien indirect : L'image à suivre est définie en réduisant la zone autour de la particule piégée. Sur l'image suivante, la zone réduite ne sera plus centrée sur la particule qui aura bougé. Cette zone va alors se déplacer pas à pas et la différence entre les images réduites sera ajustée avec une fonction Gaussienne. Cette technique est la plus adaptée lorsqu'il y a plusieurs particules piégées simultanément.

Nous avons principalement utilisé la seconde méthode pendant ces travaux. Le processus est répété sur chaque image qui constitue la vidéo. Nous obtenons ainsi des tracés de la position de la particule au cours du temps dans les deux directions (Fig. 2.17.b) et sa trajectoire en deux dimensions dans le plan de la caméra (Fig. 2.17.c).

À partir des tracés de la fluctuation de la position d'un objet piégé, nous calculons l'efficacité de piégeage, et plus particulièrement la constante de raideur optique. Pour cela, nous utilisons trois principales méthodes : la statistique de Boltzmann, l'étude fréquentielle (ou "power spectra") et l'autocorrélation des oscillations en position de la particule. Dans tous les cas, nous pouvons distinguer l'efficacité du piège suivant deux directions : la direction axiale et celle transverse par rapport à l'axe des pointes de notre pince.

2.3.2 Statistique de Boltzmann

La première méthode repose sur l'étude statistique de la position de la particule piégée. Cette technique est basée sur le fait que la densité de probabilité $P(x)$ de trouver un objet dans le puit de potentiel $U(x)$ à une certaine position x , peut être décrite en utilisant la statistique de Boltzmann :

$$P(x) = \frac{1}{Z} e^{-\frac{U(x)}{k_B T}} \quad (2.3)$$

avec Z la fonction de partition, k_B la constante de Boltzmann et T la température.

Un piège optique utilisant un laser ayant un faisceau Gaussien devrait exercer une force harmonique sur la particule piégée. Cette force s'écrit : $F_{trap} = -\kappa_x \cdot (x - x_0)$, avec κ_x la constante de raideur qui caractérise le potentiel de piégeage dans la

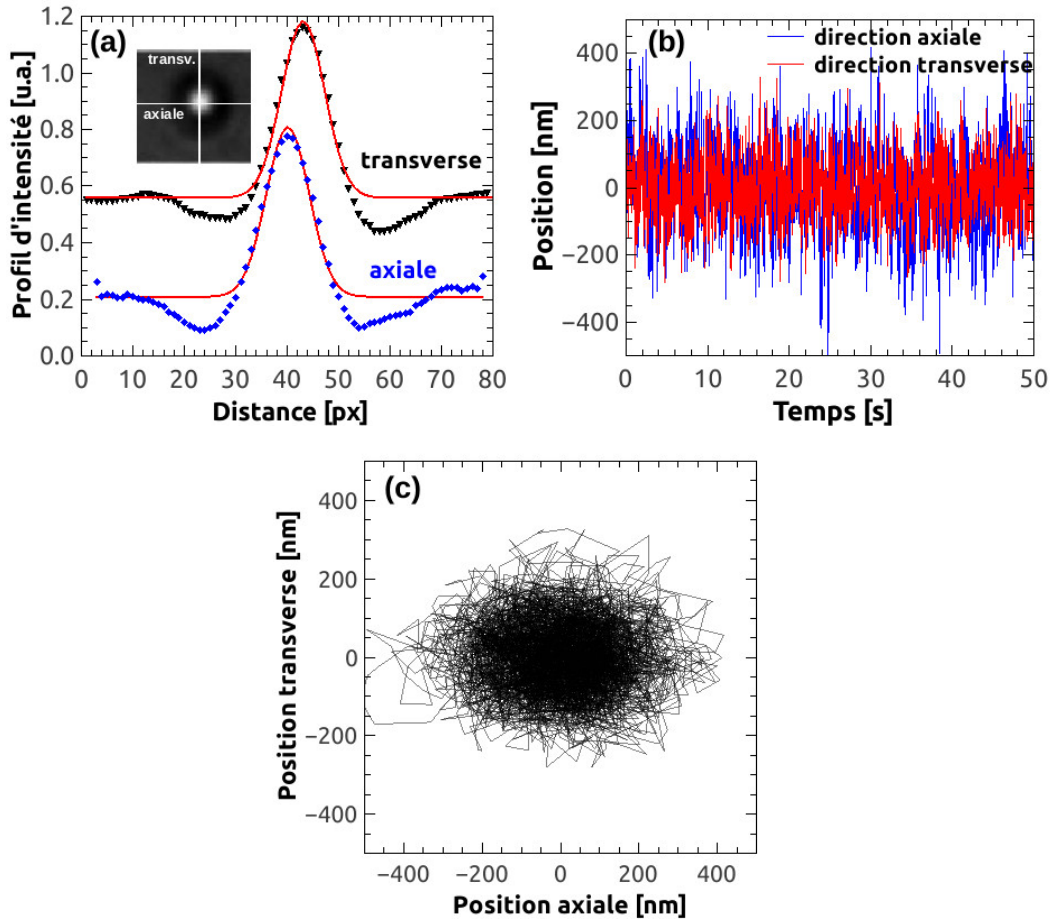


Figure 2.17: (a) Profil d'une particule d'1 μm piégée, suivant la direction axiale et transverse, les lignes correspondent à des ajustements Gaussiens. Insert : image optique de la particule en question. (b) Fluctuation temporelle en position de la particule piégée dans les deux directions et (c) sa trajectoire.

direction x et x_0 la position d'équilibre. Le potentiel est alors décrit de la manière suivante :

$$U(x) = \frac{1}{2} \kappa_x \cdot (x - x_0)^2 \quad (2.4)$$

En injectant l'équation. 2.4 dans l'équation. 2.3, on obtient une fonction de forme Gaussienne :

$$P(x) \propto e^{-\frac{\kappa_x (x - x_0)^2}{2k_B T}} \quad (2.5)$$

La raideur du piège κ_x est alors directement obtenue en ajustant $P(x)$ avec une fonction Gaussienne, où :

$$\kappa_x = \frac{k_B T}{\sigma_x^2} \quad (2.6)$$

σ_x étant l'écart-type de la fonction.

En étudiant ces équations, nous comprenons que plus la raideur κ_x du piège est élevée, plus la distribution Gaussienne est étroite et donc moins la particule bouge. Les expressions sont exactement similaires dans la direction y , avec une raideur κ_y différente.

La Figure 2.18 présente les distributions statistiques de la position de la particule piégée dans les directions axiale et transverse, ainsi que leurs puits de potentiel respectifs. Les valeurs expérimentales correspondent bien à des fonctions Gaussiennes. Par conséquent, les potentiels sont de forme harmonique.

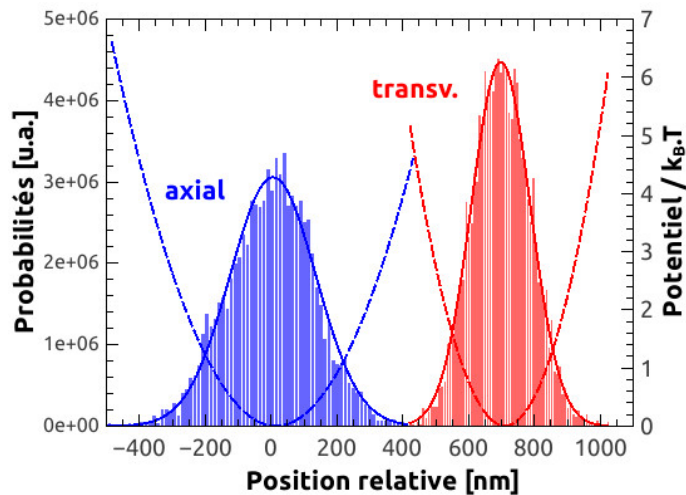


Figure 2.18: Distribution statistique de la position d'une particule d'1 μm piégée suivant la direction axiale et transverse. Les lignes sont des ajustements Gaussiens. Les courbes en pointillés correspondent aux puits de potentiel.

Cette méthode est celle que nous utilisons le plus fréquemment puisqu'elle permet non seulement de calculer la raideur du piège et donc d'estimer son efficacité, mais également de visualiser la forme du potentiel de piégeage. Ce point est intéressant dans le cas où il y aurait plusieurs positions stables de piégeage. Cette méthode est également plus versatile puisque le piège ne doit pas forcément être de forme harmonique. De plus, il n'est pas nécessaire de connaître les caractéristiques de l'objet

piégé (forme, taille, indice de réfraction, viscosité du milieu environnant). Seule la température doit être connue.

2.3.3 Étude fréquentielle : densité spectrale de puissance

La seconde méthode est basée sur l'analyse fréquentielle du mouvement Brownien résiduel de la particule piégée. Pour simplifier l'écriture, le modèle est décrit pour un mouvement dans une seule direction (x). La généralisation à deux ou trois dimensions se fait de manière similaire. Le mouvement d'une particule dans un potentiel de piégeage harmonique sous l'influence de fluctuations thermiques et d'une force de frottement, peut être décrit par l'équation de Langevin :

$$m\ddot{x}(t) + \gamma_0\dot{x}(t) + \kappa x(t) = (2k_B T \gamma_0)^{1/2} \xi(t) \quad (2.7)$$

avec $-\kappa x(t)$ la force harmonique du piège, $\gamma_0 = 6\pi\eta a$ le coefficient de friction pour une particule sphérique (loi de Stokes), m , a et $x(t)$ respectivement la masse, le rayon et la trajectoire de la particule piégée, η la viscosité cinématique du milieu et $(2k_B T \gamma_0)^{1/2} \xi(t)$ une distribution Gaussienne aléatoire qui représente les forces Browniennes à température T .

Une sphère de 500 nm de rayon en polystyrène possède une masse $m = 4/3\pi a^3 \rho = 5.5 \cdot 10^{-16}$ kg (avec $\rho = 1,05 \cdot 10^3$ kg m⁻³, la masse volumique du polystyrène) et son coefficient de friction dans l'eau à 20°C vaut $\gamma_0 = 9,44 \cdot 10^{-9}$ kg s⁻¹. Le temps caractéristique de perte d'énergie cinétique par friction ($m/\gamma_0 \approx 6 \cdot 10^{-8}$ s) est beaucoup plus court que la résolution temporelle de l'expérience. Par conséquent nous pouvons négliger le premier terme de l'équation 2.7 et le système est considéré comme sur-amorti.

Après avoir enregistré la trajectoire de la particule $x(t)$ pendant la durée totale de la mesure, nous effectuons une transformée de Fourier sur $x(t)$ et $\xi(t)$ de l'équation de mouvement. Le spectre fréquentiel est alors obtenu en élevant la transformée de Fourier au carré et en la divisant par le temps total de la mesure. Le spectre est de forme Lorentzienne et il est décrit de la manière suivante :

$$P(f_k) = \frac{k_B T}{2\pi^2 \gamma_0 (f_c^2 + f_k^2)} \quad (2.8)$$

avec f_k la fréquence d'oscillation à partir de la transformée de Fourier et f_c la fréquence de coupure de la particule piégée. Celle-ci est directement proportionnelle à la raideur du piège κ :

$$f_c = \frac{\kappa}{2\pi\gamma_0} \quad (2.9)$$

La démonstration pour arriver à cette équation peut être trouvée dans la référence [80]. Avec cette méthode, nous pouvons donc calculer la raideur de piégeage mais aussi la température et le rayon de la particule piégée (compris dans le coefficient de friction γ_0). Dans l'exemple présenté, nous retrouvons bien une particule d'1 μm de diamètre avec une température de 295 K. L'ajustement sur ces deux paramètres peut donc être un moyen de contrôler nos mesures.

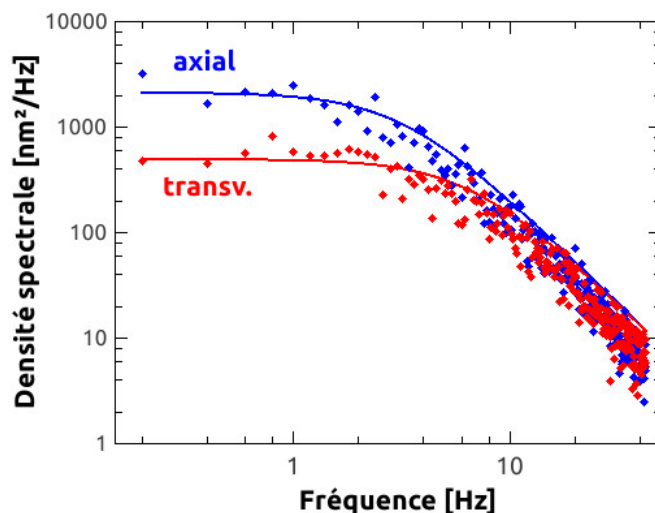


Figure 2.19: Étude fréquentielle de la position transverse et axiale d'une particule d'1 μm . Les lignes correspondent à des ajustements avec des fonctions Lorentziennes.

La Figure 2.19 présente des spectres fréquentiels du mouvement de la particule piégée suivant les directions axiale et transverse. Nous distinguons deux régimes. Pour des fréquences largement inférieures à la fréquence de coupure ($f_k \ll f_c$), la densité spectrale est constant et est inversement proportionnel à la raideur du piège κ . L'expression de l'équation. 2.8 s'écrit alors :

$$P(f_k \ll f_c) = 2k_B T \frac{\gamma_0}{\kappa^2} \quad (2.10)$$

À haute fréquence ($f_k \gg f_c$), le terme d'amortissement $\gamma_0 \dot{x}$ surpasse la force de rappel κx dans l'équation. 2.7. Par conséquent, le spectre est indépendant de κ et s'écrit :

$$P(f_k \gg f_c) = \frac{k_B T}{2\pi^2} \frac{1}{\gamma_0 f_k^2} \quad (2.11)$$

La fréquence de coupure de la particule peut-être estimée en visualisant le spectre fréquentiel. Elle correspond à la courbure de transition entre les deux régimes décrits précédemment.

Les résultats de cette méthode sont précis et reproductibles si la fréquence de détection est largement supérieure à la fréquence de coupure f_c de la particule piégée. Dans cet exemple, $f_c \approx 7,4$ Hz (dans la direction transverse) est bien en-dessous de la fréquence de lecture de la caméra qui est de 100 fps. Par contre, pour des raideurs optiques plus importantes où des particules de plus petites dimensions (c'est-à-dire γ_0 plus faible), la vitesse de lecture de la caméra peut être une très grande limitation.

2.3.4 Autocorrélation

Nous avons vu précédemment que le système était sur-amorti. L'équation. 2.7 devient alors :

$$\dot{x}(t) = -\frac{\kappa}{\gamma_0}x(t) + \left(\frac{2k_B T}{\gamma_0}\right)^{1/2} \xi(t) \quad (2.12)$$

En résolvant cette équation différentielle, la fonction d'autocorrélation pour les fluctuations en position de la particule est la suivante :

$$\langle x(t)x(t+\tau) \rangle = \frac{k_B T}{\kappa} e^{-|\tau|/\tau_0} \quad (2.13)$$

avec τ_0 le temps de relaxation qui est inversement proportionnel à κ :

$$\tau_0 = \frac{\gamma_0}{\kappa} \quad (2.14)$$

La démonstration peut être trouvée dans la référence [81]. Les positions de la particule sont donc corrélées sur une échelle de temps τ_0 , qui doit être plus courte que l'intervalle de temps entre chaque image de la vidéo.

La Figure 2.20 illustre la fonction d'autocorrélation de la particule piégée suivant les deux directions. La raideur κ du piège est alors obtenue en ajustant ces courbes avec des fonctions exponentielles décroissantes. Nous constatons dans cet exemple que la fonction d'autocorrélation décroît rapidement, ce qui se traduit par le faible nombre de points expérimentaux. C'est pour cette raison que nous avons rarement utilisé cette méthode pendant ma thèse. Nous y reviendrons dans le prochain chapitre.

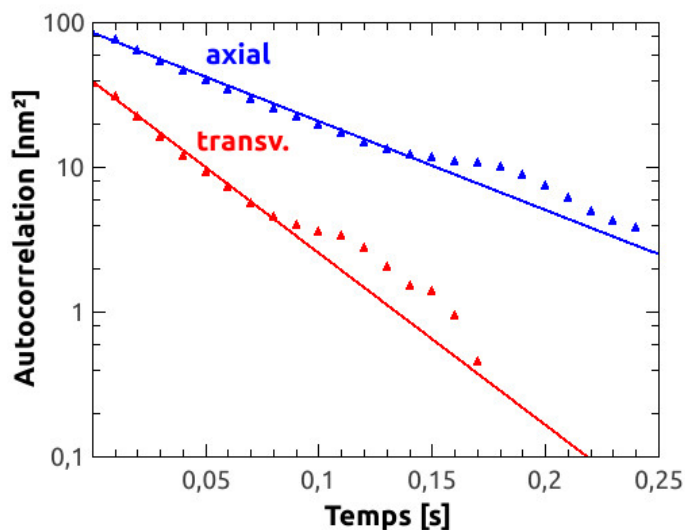


Figure 2.20: Fonction d'autocorrélation de la position axiale et transverse d'une particule d'1 μm . Les lignes sont des ajustements avec des exponentielles décroissantes.

2.3.5 Mesure du signal retour U_R

Une autre méthode permettant de caractériser le piégeage est non plus d'analyser le mouvement de la particule, mais d'étudier la lumière réfléchie qui retourne dans les pointes. Ce signal que l'on nomme U_R , a été mentionné dans le paragraphe 2.1.2 et schématisé sur la Figure 2.4.

Comme nous pouvons le voir sur la Figure 2.21.a qui présente l'évolution temporelle de l'intensité du signal retour, le piégeage d'une particule implique un changement radical avec de très fortes modulations en intensité. Cela peut se comprendre en considérant que la particule bouge de manière aléatoire dans le piège et induit de ce fait d'importantes fluctuations dans le signal retour.

Ces fluctuations sont une véritable signature qui permettent d'obtenir des informations sur le piégeage. La raideur κ est calculée en effectuant une analyse fréquentielle du signal. De la même manière que précédemment, nous réalisons la transformée de Fourier sur le signal retour U_R pendant la durée totale de la mesure. Lorsqu'il n'y a aucune particule piégée, le spectre est quasiment plat, les pics étant du bruit (courbe rouge Fig. 2.21.b). Lorsqu'une particule est piégée, le spectre peut être ajusté avec une fonction Lorentzienne double que l'on écrit de la manière suivante :

$$P(f_k) = \left(\frac{P_1}{2\pi^2\gamma_0(f_{c1}^2 + f_k^2)} \right) + \left(\frac{P_2}{2\pi^2\gamma_0(f_{c2}^2 + f_k^2)} \right) \quad (2.15)$$

avec $f_{c1} = \kappa_{tr}/(2\pi\gamma_0)$ et $f_{c2} = \kappa_{ax}/(2\pi\gamma_0)$ les fréquences de coupures liées aux constantes de raideur κ_{tr} et κ_{ax} , respectivement dans la direction transverse et axiale. P_1 et P_2 sont des paramètres d'ajustement liés à la mesure. Ces fréquences de coupure correspondent aux deux épaulements visibles sur le spectre (courbe bleue, Fig. 2.21.b).

Cette méthode nous permet de calculer κ mais ne nous donne pas d'informations sur la température comme ce fut le cas précédemment. En effet, il n'y a pas de calibration entre la tension mesurée et la position de la particule qui permettait de déterminer la température. Finalement dans ce cas, la valeur de la densité spectrale n'est pas absolue.

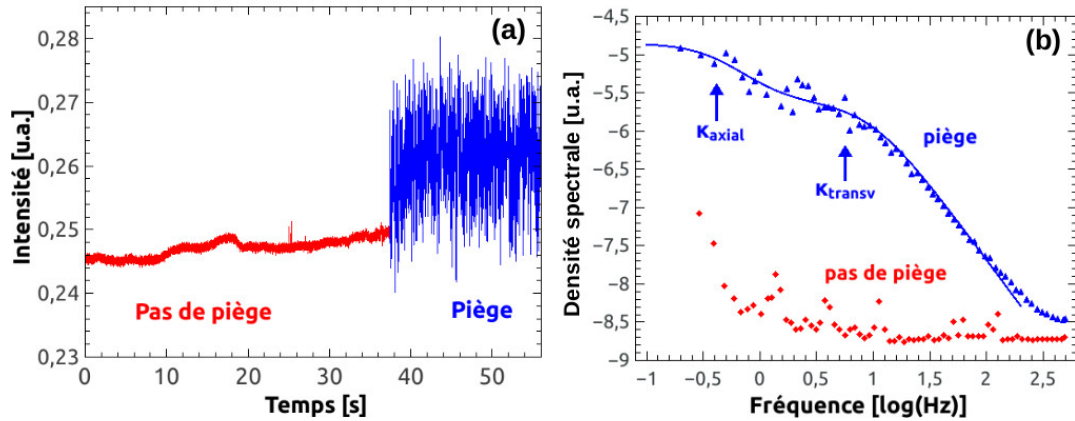


Figure 2.21: Mesure du signal retour réfléchi à l'échelle temporelle (a) et fréquentielle (b) sans particule (rouge) et avec une particule piégée (bleu) entre les pointes. La ligne correspond à un ajustement avec une fonction Lorentzienne double.

Nous verrons que l'étude de l'influence d'une particule piégée sur le signal retour U_R peut s'avérer être très utile, notamment pour le piégeage de particules de taille nanométrique. En effet, les nanoparticules sont difficilement détectables par observation optique directe. Elles le sont seulement avec une très faible fréquence de lecture lorsqu'elles sont luminescentes (quelques dizaines de Hz). Or nous avons vu précédemment que les méthodes utilisant le mouvement résiduel de la particule sont précises et reproductibles seulement si la fréquence de lecture de détection est nettement supérieure à la fréquence de coupure f_c de la particule étudiée. En exploitant le signal retour mesuré par les photodiodes, la fréquence de lecture peut atteindre plusieurs dizaines de kHz, ce qui reste bien au-delà de la fréquence de coupure des nanoparticules.

Pour résumer, les trois méthodes permettant de mesurer la raideur de piégeage κ à partir du mouvement Brownien résiduel de la particule piégée sont les suivantes :

- **Statistiques de Boltzmann** : $\kappa = k_B T / \sigma^2$ avec σ l'écart type de l'ajustement Gaussien.
- **Spectre fréquentiel** : $\kappa = 2\pi\gamma_0 \cdot f_c$ avec f_c la fréquence de coupure déterminée à partir d'un ajustement avec une fonction Lorentzienne.
- **Autocorrélation** : $\kappa = \gamma_0 / \tau_0$ avec τ_0 le temps de relaxation de la fonction exponentielle décroissante.

Ces méthodes donnent de très bon résultats si la fréquence de détection est bien supérieure à la dynamique de la particule piégée.

CHAPITRE 3

Piégeage de microparticules

3.1 Piégeage optique avec deux pointes	68
3.1.1 Description	68
3.1.2 Efficacité de piégeage, constante de raideur	69
3.1.3 Étude du signal retour U_R	74
3.2 Mesures complémentaires des forces optiques	77
3.2.1 Piégeage optique avec une pointe	77
3.2.2 Modulation en intensité	79
3.2.3 Système micro-fluidique	82
3.3 Piégeage avec un faisceau de Bessel	84
3.3.1 Faisceau de Bessel : description	84
3.3.2 Fabrication et caractérisation des nano-antennes	85
3.3.3 Piégeage de microparticules	88
3.4 Conclusion	92

Les premières expériences de piégeage ont été réalisées avec des particules diélectriques, sphériques en polystyrène mesurant 1 μm de diamètre. Nous les appellerons plus simplement “microparticule” dans la suite de ce manuscrit. Nous avons choisi d’utiliser ces particules pour plusieurs raisons. Tout d’abord, elles restent en suspension dans l’eau pendant plusieurs heures, ce qui est un point important pour les expériences de piégeage. Ensuite, leur taille est du même ordre de grandeur que la largeur du faisceau émis par les pointes, ce qui permet un piégeage optimale [64]. De plus elles sont très bien résolues avec notre système de visualisation. Enfin, ces particules sont de très bonne qualité, elles ont une excellente distribution en taille et elles sont facilement accessibles commercialement.

Nous étudierons en premier lieu le piégeage de ces particules avec notre pince optique à deux pointes. Nous détaillerons en particulier les caractéristiques du piège en fonction de la puissance du faisceau laser et de la distance entre les pointes. Nous expliquerons ensuite différentes mesures complémentaires permettant de déterminer les forces optiques de manière directe : à savoir la propulsion d'une particule par une pointe, la modulation en intensité du laser qui a été réalisée dans le cadre du stage de Master de Redha Rouane [82], et l'application d'un flux laminaire réalisé par Mégane Guillon et Guilhem Labeye dans le cadre de leurs stages IUT [83, 84]. J'ai participé à l'encadrement de ces étudiants durant ma thèse.

Enfin, nous remplacerons nos pointes réalisées à l'Institut Néel par des fibres optiques en forme de nano-antennes qui émettent des faisceaux quasi-Bessel. Ces ondes ont des propriétés très particulières et nous verrons quels sont les effets sur le piégeage optique des microparticules. Ce projet est réalisé en collaboration avec Samir K. Mondal et son équipe du laboratoire "Central Scientific Instruments Organization" en Inde.

3.1 Piégeage optique avec deux pointes

3.1.1 Description

Nous avons piégé des microparticules en utilisant 2 pointes optiques, placées en face à face. Celles-ci sont alignées de façon à ce qu'il y ait un maximum d'intensité transmise d'une pointe à l'autre. Comme expliqué dans le chapitre précédent, la particule est piégée à l'endroit où les forces répulsives de diffusion des deux ondes se compensent (voir Fig. 1.24).

De cette manière, nous obtenons un piège reproductible et extrêmement stable de particules individuelles, qui peut durer plusieurs heures (Fig. 3.1.a). Nous utilisons typiquement des puissances lumineuses $P = 1$ à 20 mW, avec des pointes distantes de $d = 2$ à 20 μm . Pour $d < 2$ μm , la particule qui mesure elle-même 1 μm a de grande chance d'adhérer sur une des pointes. Au contraire, pour $d > 20$ μm , le piège n'est plus suffisamment stable et la particule est entraînée par son mouvement Brownien.

Il est également possible de piéger deux ou trois particules simultanément pendant quelques minutes. Dans ce cas, elles se positionnent en ligne le long de l'axe optique des pointes (Fig. 3.1.b). Ce phénomène d'interaction entre plusieurs particules appelé "optical binding" a été évoqué dans le premier chapitre, partie 1.4.2 [65, 67]. Il n'est cependant pas le sujet de l'étude et ne sera pas plus détaillé dans ce manuscrit.

Enfin, il est possible de contrôler la position de la particule piégée dans la direction axiale en modifiant l'intensité relative émise par les deux pointes. Pour ce faire, nous

tourne la polarisation de l'onde à l'aide de la lame demi-onde placée devant le cube séparateur polarisant (n°4 Fig. 2.3). Ainsi, en augmentant l'intensité dans la fibre de droite, la particule est poussée vers la gauche et vice-versa (Figs. 3.1.c-d). Nous verrons dans la suite de ce chapitre qu'en faisant osciller la particule, la force optique dans la direction axiale peut être mesurée.

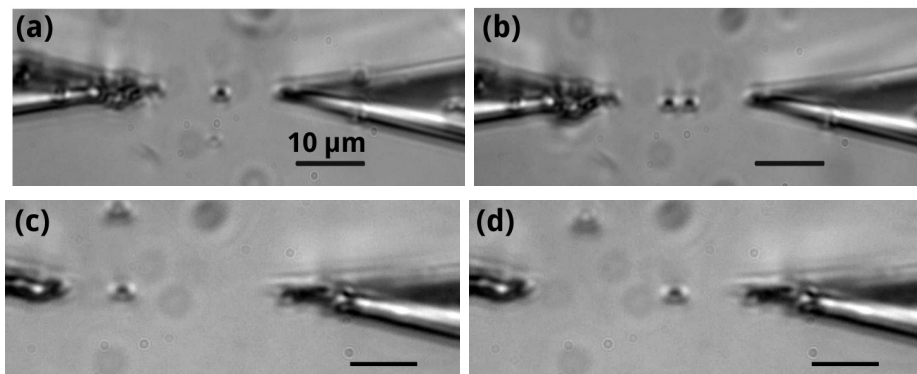


Figure 3.1: Piégeage d'une (a) et de deux (b) particules entre deux pointes optiques. (c)-(d) Contrôle de la position de la particule dans la direction axiale en modifiant l'intensité relative dans les pointes.

3.1.2 Efficacité de piégeage, constante de raideur

L'efficacité de piégeage dépend principalement de deux paramètres : la puissance P du faisceau injecté dans les fibres et la distance d entre celles-ci. Dans le but d'étudier les effets de ces paramètres sur la raideur du piège, nous avons réalisé deux séries d'expériences. La première série est enregistrée avec $d = 11,5 \mu\text{m}$ et des puissances allant de 2,6 à 9 mW. La deuxième série est réalisée en modifiant la distance de 2 à 8 μm avec $P = 13,3 \text{ mW}$. La fréquence de lecture de la caméra est de 100 fps pour ces mesures.

Les trajectoires d'une microparticule piégée de ces deux séries sont tracées sur la Figure 3.2. Tout d'abord, nous remarquons que le mouvement de la particule est de plus en plus faible lorsque P augmente et d diminue. De plus, la particule est beaucoup plus confinée dans la direction transverse que dans la direction axiale. Cet effet est encore plus visible lorsque les pointes sont très proches. Nous allons vérifier par la suite ces premières observations. L'efficacité de piégeage est déterminée à partir de ces tracés en utilisant les trois méthodes décrites dans la partie 2.3.

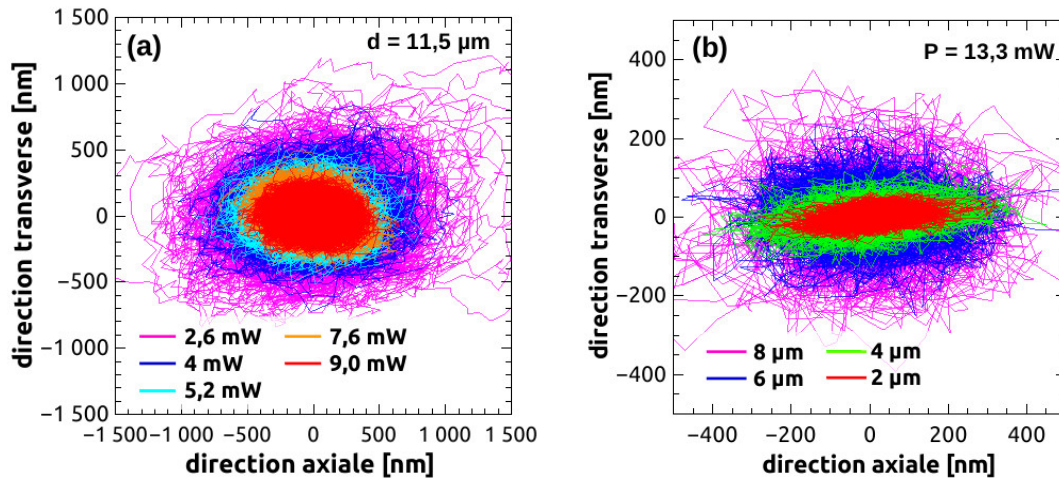


Figure 3.2: Trajectoire d'une microparticule piégée pour (a) différentes puissances (avec $d = 11,5 \mu\text{m}$) et (b) distances (avec $P = 13,3 \text{ mW}$).

Les distributions statistiques de la position de la particule piégée dans la direction transverse pour plusieurs puissances et distances sont tracées sur la Figure 3.3. Les points expérimentaux sont très bien ajustés avec des fonctions Gaussiennes. Cela nous permet de calculer les raideurs du piège à partir de la largeur de l'ajustement, à l'aide de l'équation 2.5.

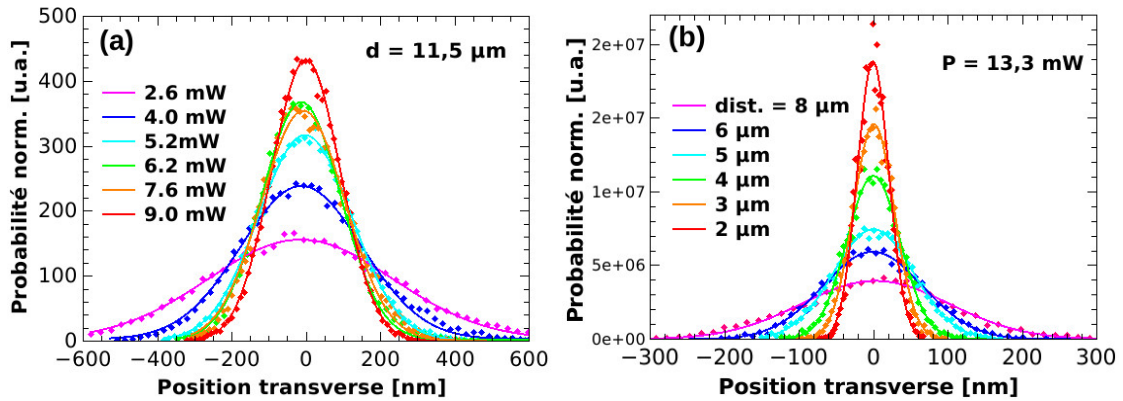


Figure 3.3: Distribution statistique de la position transverse d'une microparticule pour différentes puissances (a) et plusieurs distances entre les pointes (b). Les lignes correspondent à des fonctions Gaussiennes.

Les potentiels de piégeage sont calculés à partir de ces distributions avec l'équation 2.3 qui peut également s'écrire : $U(x) = -k_B T \ln[P(x)] + U_0$. Les données expérimentales sont ajustées avec des fonctions paraboliques (Fig. 3.4). Cela signifie que le piège est bien de forme harmonique. Ce point est très important, il justifie l'utilisation des deux autres méthodes : l'étude fréquentielle et l'autocorrélation de la position de la particule.

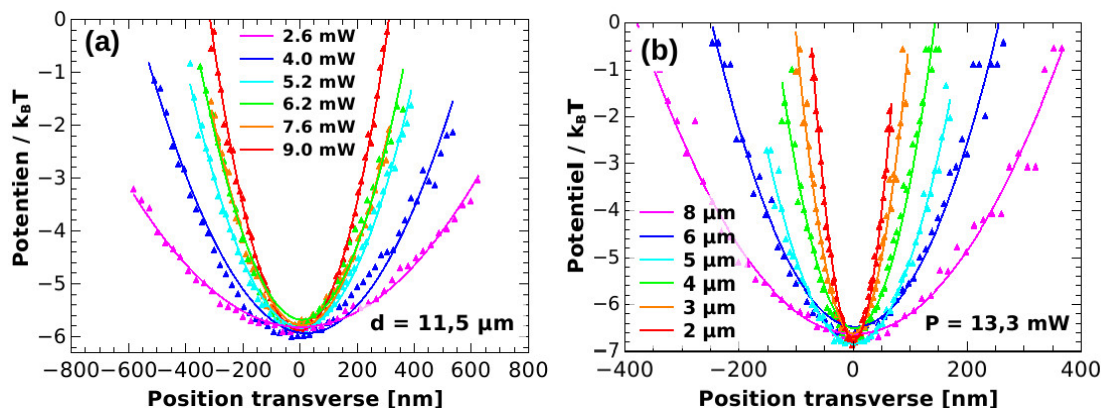


Figure 3.4: (a)-(b) Potentiels de piégeage pour différents P et d . Les points sont ajustés avec des fonctions paraboliques.

Qualitativement, nous remarquons que plus la puissance est importante et plus les pointes sont rapprochées, plus la distribution et le puit de potentiel sont étroits. Cela signifie que la particule bouge de moins en moins, comme nous l'avons remarqué précédemment, et donc que le piégeage devient plus efficace. Les raideurs du piège sont détaillées dans la suite de ce chapitre.

Les spectres fréquentiels des deux séries sont présentés sur la Figure 3.5. Ils sont ajustés avec la fonction décrite par l'équation 2.8 de forme Lorentzienne. De manière générale, nous remarquons que pour des basses fréquences, la densité spectrale diminue lorsque la puissance augmente et la distance décroît. D'après l'équation 2.10, cela signifie que la raideur κ du piège augmente. Pour les hautes fréquences, les densités convergent et tendent vers la même limite. Nous retrouvons donc dans ce cas qu'elles ne dépendent plus de κ (voir éq. 2.11).

Pour les plus petites distances ($d = 2$ et $3 \mu\text{m}$), l'ajustement numérique devient assez délicat. Nous avons vu dans le chapitre précédent (partie 2.3) que les mesures sont précises si la fréquence de coupure de la particule piégée ($f_c = \kappa/2\pi\gamma_0$) est nettement supérieure à la fréquence de lecture de détection. f_c qui est donc proportionnel à κ , augmente lorsque la distance inter-pointe diminue. Pour des faibles distances, nous remarquons que f_c devient très proche de la fréquence de coupure de la caméra qui est de 50 Hz. Ainsi la fréquence de coupure de la particule passe de 6 Hz pour une

distance de $8 \mu\text{m}$ à 40 Hz pour une distance de $2 \mu\text{m}$. Cela se traduit sur les spectres fréquentiels qui ont une partie constante majoritaire et une très petite partie qui décroît linéairement à plus haute fréquence (courbe rouge Fig. 3.5.b).

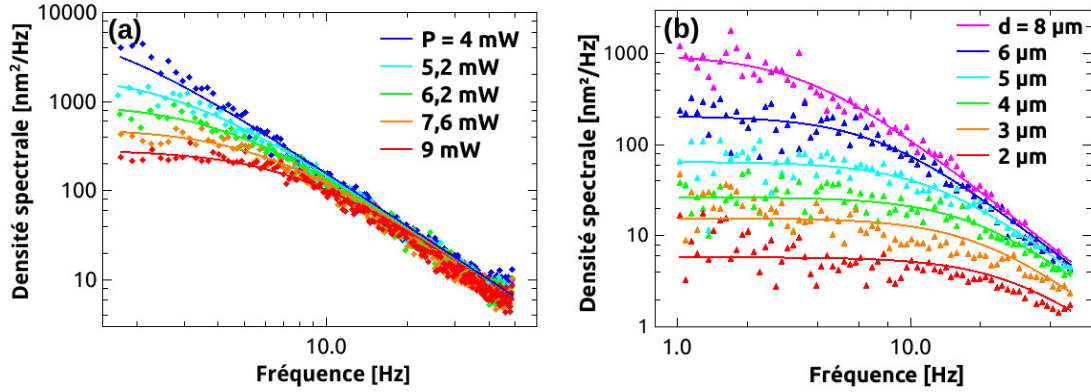


Figure 3.5: Spectres fréquentiels de la position transverse d'une microparticule pour plusieurs puissances (a) et distances (b). Les lignes sont des ajustements Lorentziens.

Les fonctions d'autocorrélation des fluctuations de la position transverse de la particule sont tracées sur la Figure 3.6. Les points expérimentaux sont ajustés avec des fonctions exponentielles décroissantes. Les courbes diminuent plus rapidement lorsque la puissance augmente et la distance diminue, ce qui signifie une nouvelle fois que κ évolue dans le bon sens.

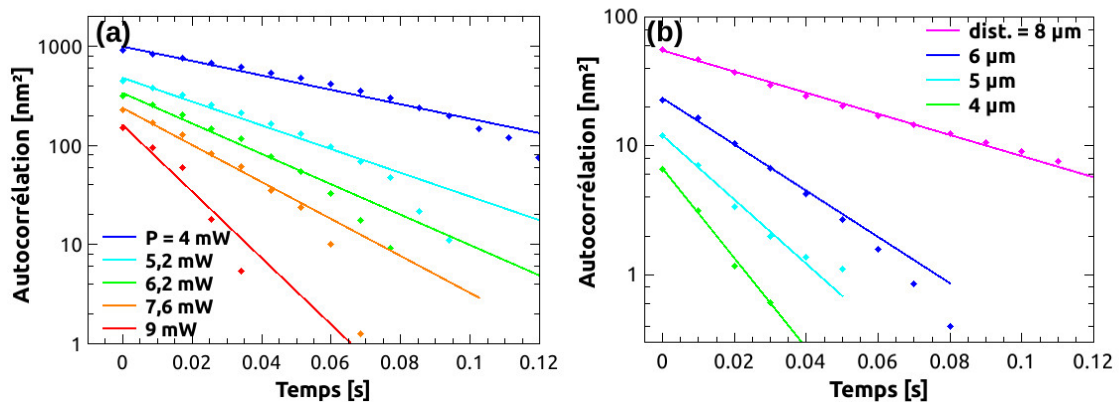


Figure 3.6: Autocorrélation de la position transverse d'une microparticule pour plusieurs puissances (a) et distances (b). Les lignes sont des ajustements exponentielles.

Nous ne pouvons pas utiliser cette méthode lorsque $d < 4 \mu\text{m}$. Dans ce cas, la fonction d'autocorrélation décroît trop rapidement. Autrement dit, le temps de relaxation τ_0

de la décroissance exponentielle est trop faible par rapport à l'intervalle de temps entre chaque image enregistrée par la caméra. La mesure est déjà délicate pour $d = 4$ et $5 \mu\text{m}$ et pour $P = 9 \text{ mW}$ puisqu'il y a seulement quelques points expérimentaux.

Les valeurs des raideurs de piégeage κ calculées avec les trois méthodes dans les directions transverse et axiale sont reportées en fonction de la puissance sur la Figure 3.7. Nous constatons que κ croît linéairement avec P dans les deux directions. Cette linéarité confirme que nous sommes bien en présence de forces optiques (voir éq. 1.1). De plus les trois méthodes utilisées donnent des valeurs tout à fait comparables dans les deux directions.

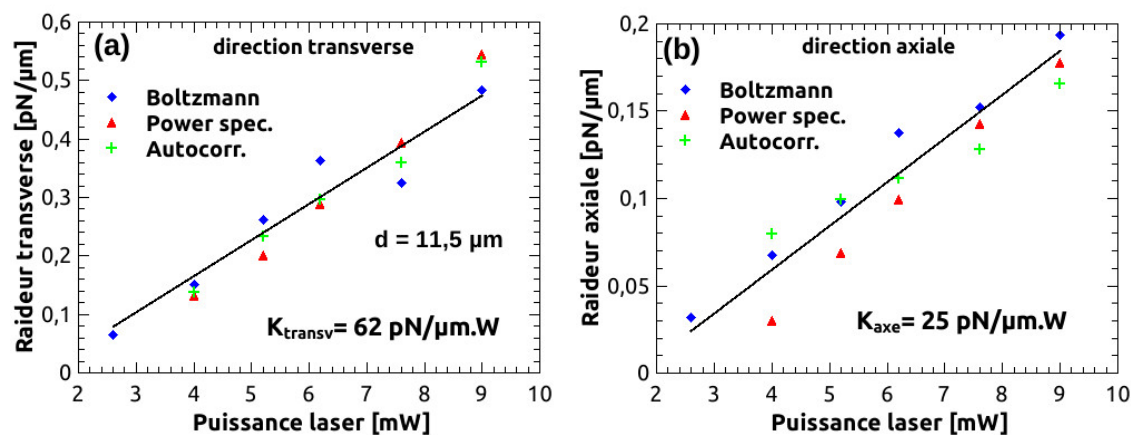


Figure 3.7: Raideur de piégeage calculée avec les 3 méthodes dans les directions transverse (a) et axiale (b) en fonction de P . Les lignes sont des ajustements linéaires.

Nous mesurons des raideurs normalisées en puissance de $\tilde{\kappa}_{\text{trans}} = 62 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$ et $\tilde{\kappa}_{\text{axe}} = 25 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$ respectivement suivant la direction transverse et axiale (pour $d = 11,5 \mu\text{m}$). Cette différence est due à la géométrie de notre pince optique. Dans la direction transverse, les forces de gradients sont dominantes et elles attirent la particule dans la même direction, au niveau de l'axe optique des pointes. Alors que dans la direction axiale, les forces de diffusions des deux ondes contra-propagatives repoussent la particule dans deux directions opposées, rendant le piège moins stable dans cette direction (Fig. 1.24).

Les raideurs sont également mesurées en fonction de la distance d entre les pointes (Fig. 3.8). Elles sont très largement exaltées lorsque les pointes sont rapprochées. Elles passent de $0,25 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$ pour $d = 10 \mu\text{m}$ à plus de $9 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$ pour $d = 2 \mu\text{m}$ dans la direction transverse (avec la méthode de Boltzmann).

Nous remarquons que les raideurs varient en $1/d^2$ dans les deux directions. Nous l'expliquons avec les mesures d'intensité transmise entre deux pointes qui diminuent

également en $1/d^2$, comme expliqué dans le chapitre précédent (Fig. 2.16.b). La comparaison des raideurs obtenues avec la méthode de Boltzmann et l'analyse fréquentielle est très bonne pour $d > 4 \mu\text{m}$. Pour des plus petites distances, les valeurs divergent quelque peu. Comme nous l'avons vu, cela est dû à la fréquence de coupure trop proche de celle de la détection. Quant aux raideurs calculées avec l'autocorrélation, elles ne sont en accord qu'avec $d = 8 \mu\text{m}$ voir $6 \mu\text{m}$. Pour des plus petites distances, nous avons vu que la fonction d'autocorrélation décroît trop rapidement pour pouvoir effectuer des ajustements numériques suffisamment précis.

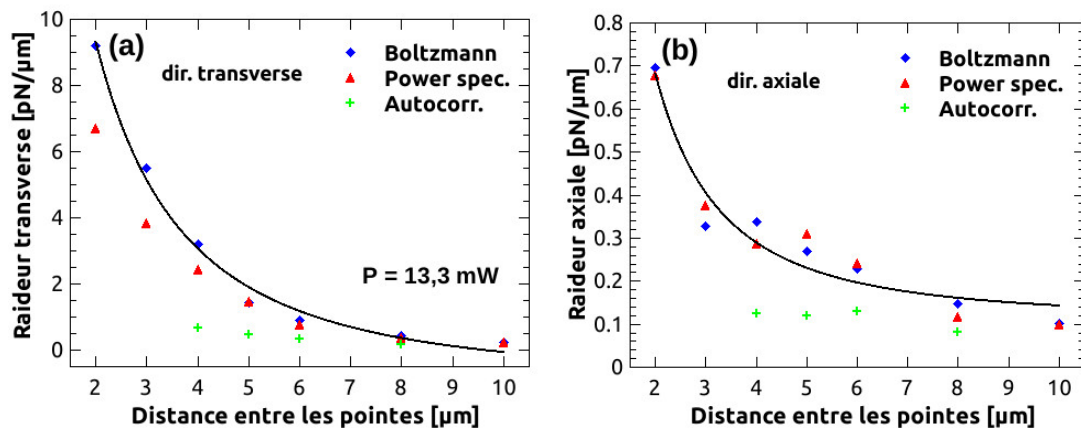


Figure 3.8: Raideur de piégeage en fonction de la distance entre les pointes dans la direction transverse (a) et axiale (b). Les lignes sont des ajustements en $1/d^2$.

Un récapitulatif des raideurs mesurées à partir des trois méthodes est présenté sur les tableaux 3.1 et 3.2 avec respectivement différentes puissances et distances. Ils pourront être utilisés pour comparer les raideurs obtenues dans d'autres expériences de piégeage.

Précisons que nous avons effectué ces mesures de nombreuses fois pendant ma thèse. Celles-ci sont reproductibles à condition que la lumière émise par les pointes soit identique et que le système soit bien stable.

3.1.3 Étude du signal retour U_R

Comme nous l'avons expliqué dans le chapitre précédent, le signal retour U_R mesuré par les photodiodes peut être exploité pour obtenir des informations sur le piégeage des particules (voir partie 2.3.5). Cela permet d'acquérir des mesures à plus haute fréquence que la caméra de visualisation, qui peut être limitée lorsque la particule est très fortement piégée.

Table 3.1: Raideurs de piégeage (en $\text{pN } \mu\text{m}^{-1}$) calculées avec les 3 méthodes pour différentes puissances ($d = 11,5 \mu\text{m}$).

Puissance [mW]	Boltzmann		Powerspectra		Autocorrélation	
	κ_{tran}	κ_{axi}	κ_{tran}	κ_{axi}	κ_{tran}	κ_{axi}
4	0,15	0,07	0,13	0,03	0,14	0,08
5,2	0,26	0,10	0,20	0,07	0,23	0,10
6,2	0,36	0,14	0,29	0,10	0,30	0,11
7,6	0,33	0,15	0,39	0,14	0,36	0,13
9,0	0,48	0,19	0,54	0,18	0,53	0,16

Table 3.2: Raideurs (en $\text{pN } \mu\text{m}^{-1}$) pour plusieurs distances ($P = 13,3 \text{ mW}$).

Distance [μm]	Boltzmann		Powerspectra		Autocorrélation	
	κ_{tran}	κ_{axi}	κ_{tran}	κ_{axi}	κ_{tran}	κ_{axi}
10	0,25	0,10	0,25	0,10	0,10	0,05
8	0,42	0,15	0,35	0,12	0,16	0,08
6	0,91	0,23	0,78	0,24	0,35	0,13
5	1,43	0,27	1,45	0,31	0,48	0,12
4	3,20	0,34	2,42	0,29	0,67	0,12
3	5,50	0,33	3,83	0,37	/	/
2	9,20	0,70	6,70	0,68	/	/

La Figure 3.9.a présente l'évolution temporelle du signal U_R lorsqu'il n'y a pas de particule, puis en présence d'une et de deux particules piégées simultanément de manière stable. Le mouvement Brownien aléatoire de la particule implique de fortes modulations en intensité. Cet effet est encore plus prononcé en présence de plusieurs particules.

Sur la Figure 3.9.b, une particule est piégée de manière stable pendant quelques secondes (courbe verte) avant d'osciller entre deux positions métastables (courbe bleue). Cet effet est dû à un désalignement des pointes optiques au cours de l'expérience. Par conséquent, les forces de diffusion des deux faisceaux ne sont plus alignées et poussent la particule dans les deux sens. Nous avons profité de ces grandes oscillations à basse fréquence pour comparer le signal U_R avec la position de la particule (Fig. 3.9.c). En superposant ces deux informations, nous remarquons une forte corrélation. Lorsque la particule change subitement de position (courbe bleue), le signal retour varie de la même manière (courbe rouge). Cela prouve que la modulation en intensité du signal retour est réellement dû au mouvement de la particule au sein du piège.

Enfin comme nous l'avons vu précédemment, l'analyse fréquentielle de U_R lorsqu'une particule est piégée de manière stable permet de déterminer les raideurs de piégeage dans les deux directions. Dans l'exemple présenté Figure. 3.9.d, $P = 10,2 \text{ mW}$ et $d = 4 \mu\text{m}$. Les raideurs de piégeage correspondent aux deux épaulements :

$\kappa_{trans} = 2,0 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$ et $\kappa_{axe} = 0,15 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$. En comparant ces mesures avec les raideurs du tableau 3.2 à $4 \text{ } \mu\text{m}$, nous constatons qu'elles sont plus faibles. Cette différence est due à la puissance qui est dans ce cas plus faible (10,2 contre 13,3 mW précédemment).

Nous n'exploitons pas systématiquement le signal U_R pour le piégeage de microparticules puisque comme nous l'avons vu, la caractérisation du piège par visualisation directe est suffisante (même si limitée pour des faibles distances). Cependant, nous verrons dans le prochain chapitre que ces signaux sont primordiaux pour caractériser le piégeage lorsque la particule ciblée est de taille nanométrique.

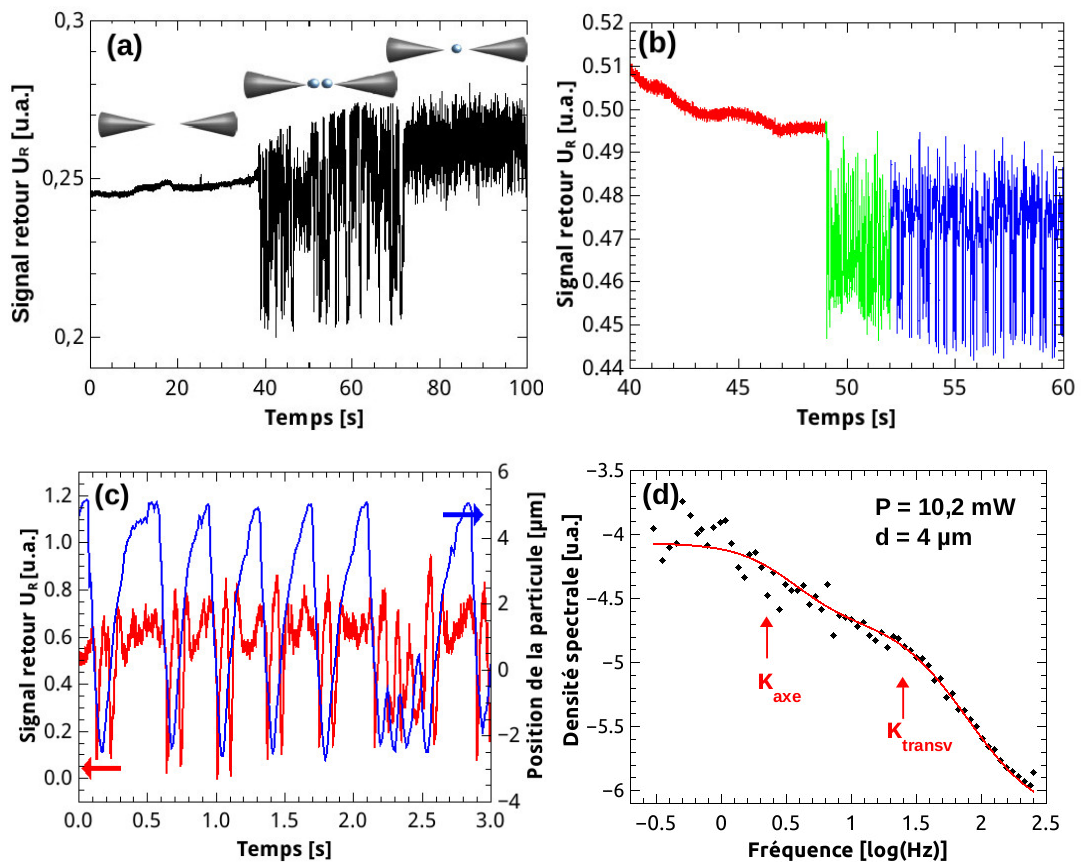


Figure 3.9: Mesure du signal retour : (a) Zéro, deux puis une particule piégée. (b) Pas de particule (rouge), piège stable (vert) et piège instable (bleu). (c) Comparaison entre le signal retour (rouge) et la position de la particule (bleu) pour une particule piégée de manière instable. (d) Spectre fréquentiel d'une particule dans un piège stable.

Pour résumer, nous avons piégé optiquement des particules sphériques en polystyrène d'1 μm de diamètre de manière extrêmement stable et reproductible. L'efficacité de piégeage est mesurée à partir du mouvement Brownien résiduel de la particule piégée en utilisant trois différentes méthodes : la statistique de Boltzmann, l'analyse fréquentielle et l'autocorrélation. Ces trois méthodes donnent des valeurs comparables si la fréquence de coupure de la particule reste bien inférieure à la fréquence de lecture de la caméra. Nous avons observé que la raideur du piège augmentait linéairement avec la puissance optique et diminuait en $1/d^2$ avec la distance d entre les pointes. Enfin, le signal retour U_R peut être exploité pour obtenir des informations sur le piégeage et mesurer des raideurs avec moins de limitation que la caméra, sa fréquence de lecture étant beaucoup plus grande.

3.2 Mesures complémentaires des forces optiques

3.2.1 Piégeage optique avec une pointe

Nous avons réalisé les premières expériences de piégeage en utilisant une seule pointe optique. Cela nous a permis d'observer et d'appréhender les forces optiques appliquées sur une microparticule, tout en évitant les étapes préliminaires d'alignement qui peuvent être délicates dans le cas où il y aurait deux pointes.

Principe de fonctionnement

Dans cette configuration, nous avons piégé optiquement des microparticules pendant des durées allant d'une seconde à quelques minutes. Une série d'image est présentée sur la Figure 3.10. Nous observons trois particules : une ayant adhéré à la pointe (flèche verte) et les deux autres étant en suspension dans l'eau.

La particule la plus proche de la pointe est d'abord attirée à l'extrémité de celle-ci par la force attractive de gradient F_{grad} . La particule est ainsi piégée optiquement pendant quelques instants (ici ≈ 2 s). De la même manière qu'une pince optique conventionnelle et comme nous l'avons vu dans la partie introductive **1.1.2**, la particule est piégée à l'endroit où F_{grad} surpasse la force répulsive de diffusion F_{diff} . Dans cette configuration, le piégeage est très éphémère puisque la particule qui est soumise au mouvement Brownien, peut quitter cette position stable et être propulsée par F_{diff} .

Nous constatons également que ce phénomène est très localisé au niveau du bout de la pointe puisque l'autre particule se trouvant à 6 μm est indifférente des forces optiques.

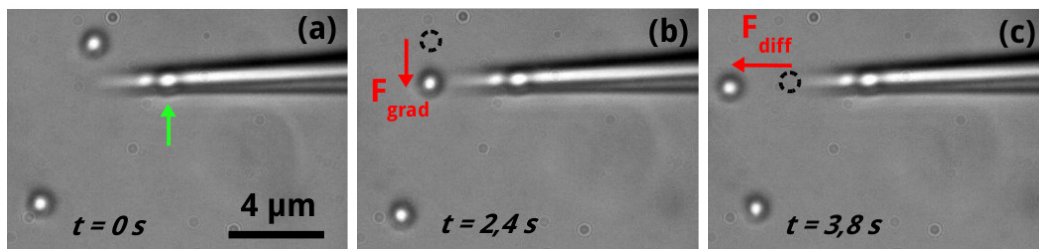


Figure 3.10: Images par microscopie optique d'une microparticule. (a) Le laser est éteint. (b) Le laser est allumé, la particule la plus proche est attirée par F_{grad} . (c) La particule quitte sa position stable de piégeage et est éjectée par F_{diff} .

Mesure des forces optiques

La propulsion des particules se révèle être un phénomène très intéressant puisqu'elle nous permet de mesurer directement les forces optiques appliquées à la particule.

La particule propulsée est suivie sur quelques centaines d'images et sa trajectoire nous permet de déterminer la force de diffusion dans la direction axiale. Celle-ci bougeant sur plus de $10\ \mu\text{m}$, nous considérons que son mouvement Brownien est négligeable dans cette direction. Nous avons vu dans la partie **2.3.3** que le système était sur-amorti et donc que la masse de la particule était négligeable. Par conséquent, l'équation du mouvement s'écrit :

$$F_{opt} = F_{stokes} = 6\pi a\eta \cdot v \quad (3.1)$$

La force optique correspond donc à la force de Stokes et est directement proportionnelle à la vitesse v de la particule propulsée.

La position de la particule éjectée dans la direction axiale et sa vitesse en fonction du temps sont tracées sur la Figure 3.11.a. Nous observons que la particule accélère d'abord très fortement par l'importante force de diffusion, et atteint une vitesse de $55\ \mu\text{m s}^{-1}$ en moins de 200 ms. Ensuite, elle ralentit sous l'effet de la force de Stokes. Les fluctuations observées sur la courbe de la vitesse sont dues à l'instabilité de la position de la particule dans le centre du faisceau.

Des particules sont éjectées avec différentes puissances optiques. Les forces optiques correspondantes sont déterminées à partir de l'équation 3.1 en fonction de la position de la particule par rapport à la pointe (Fig. 3.11.b). Les forces optiques diminuent en $1/d^2$ avec d la distance entre la pointe et la particule. Cette évolution est identique à celle des raideurs de piégeage mesurées avec la pince optique à deux pointes (Fig. 3.8) et l'explication est identique. En insert, nous avons reporté les forces optiques

maximales obtenues pour les plus petites distances en fonction de la puissance du laser. Comme attendu, les forces progressent linéairement avec la puissance. Elles varient de 0,4 à 0,7 pN pour des puissances allant de 4,8 à 8,7 mW. Ces valeurs sont dans le bon ordre de grandeur des forces optiques.

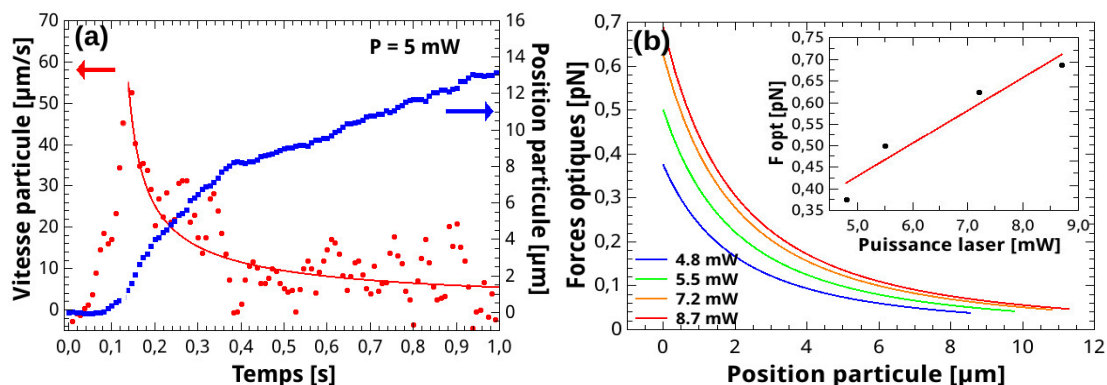


Figure 3.11: (a) Évolution de la position (bleu) et de la vitesse (rouge) de la particule éjectée. La ligne est un ajustement en $1/d^2$. (b) Force optique en fonction de la position de la particule pour 4 puissances. Insert : Force en fonction de la puissance.

3.2.2 Modulation en intensité

Nous avons vu précédemment qu'il était possible de déplacer la particule piégée le long de l'axe optique des fibres en modifiant l'intensité relative injectée dans les pointes (Figs. 3.1.c-d).

Nous sommes également capable de contrôler le mouvement d'une microparticule piégée. Nous pouvons faire osciller périodiquement la particule sur de grandes amplitudes. Pour cela, nous modulons l'intensité du faisceau laser en imposant un signal périodique. Pour ce faire, la lame demi-onde devant le cube séparateur polarisant est remplacée par un modulateur électro-optique comme énoncé dans le chapitre précédent (partie 2.1.2).

De cette manière, il est possible de faire osciller la particule sur plusieurs micromètres. Les tracés temporels de la position d'une microparticule sont présentées sur la Figure 3.12. Nous constatons que celle-ci oscille bien périodiquement dans la direction axiale avec une amplitude de près de 2 μm. Comme attendu, cet effet n'est pas observé dans la direction transverse où seul son mouvement Brownien est présent.

Plusieurs séries d'expériences ont été réalisées dans le but de déterminer les meilleurs paramètres de modulation. Pour ces mesures, nous prenons en compte une vingtaine de périodes qui sont moyennées et ramenées sur une période. Cela permet de réduire l'influence du mouvement Brownien résiduel de la particule.

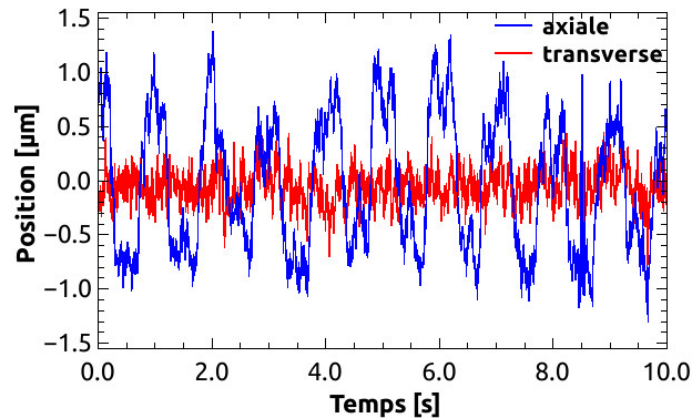


Figure 3.12: Fluctuation temporelle en position d'une microparticule dans la direction axiale et transverse, avec une modulation en intensité.

Pour commencer, nous avons choisi une modulation en forme de créneau pour que la particule réagisse très rapidement. Ainsi, l'effet est beaucoup plus prononcé qu'avec une forme sinusoïdale, par exemple. Ensuite, nous avons effectué une série de mesure en modifiant l'amplitude de la modulation (Fig. 3.13.a). La fréquence de modulation est fixée à 1 Hz. La particule oscille sur des amplitudes allant de $0,3 \mu\text{m}$ à $5,1 \mu\text{m}$. La plus petite amplitude d'oscillation est du même ordre de grandeur que le mouvement Brownien. Par conséquent, le signal se trouve bruité et ce malgré le moyennage réalisé. Finalement plus la particule oscille sur une grande distance, moins son mouvement Brownien sera visible et meilleure sera la mesure.

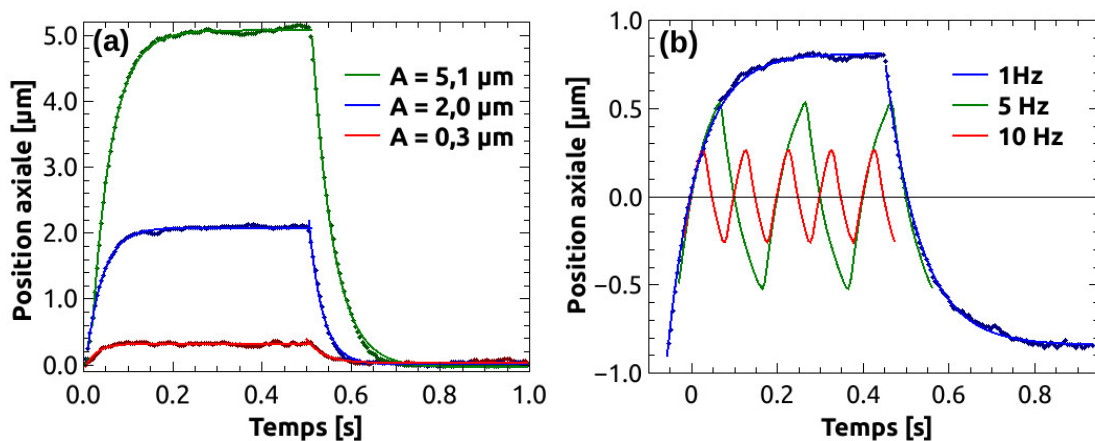


Figure 3.13: Trajectoire axiale d'une particule moyennée sur une période, pour des modulations de différentes amplitudes (a) et fréquences (b).

Enfin, nous avons observé l'effet de la fréquence d'oscillation de la modulation sur la particule piégée (Fig. 3.13.b). La fréquence est variée de 1 à 10 Hz avec une amplitude fixée à $1,7 \mu\text{m}$. Nous remarquons que plus la fréquence est élevée, plus la particule oscille rapidement et moins elle a le temps d'atteindre sa position stable de piégeage. Nous observons également que quelque soit la fréquence appliquée, les trajectoires transitoires pour passer d'une position à une autre sont identiques. Cela signifie que la force optique est identique et ne dépend pas de la fréquence d'oscillation. Les ajustements numériques sont cependant plus précis avec les mesures prises à basse fréquence.

Ce sont pour ces raisons que nous avons par la suite appliqué une modulation en forme de créneau avec un maximum d'amplitude et une fréquence d'1 Hz. Les pointes sont séparées de $10 \mu\text{m}$ pour que la particule puisse osciller sur une grande distance. La puissance optique est de 24 mW. La trajectoire de la microparticule piégée est tracée dans la direction axiale sur la Figure 3.14.a.

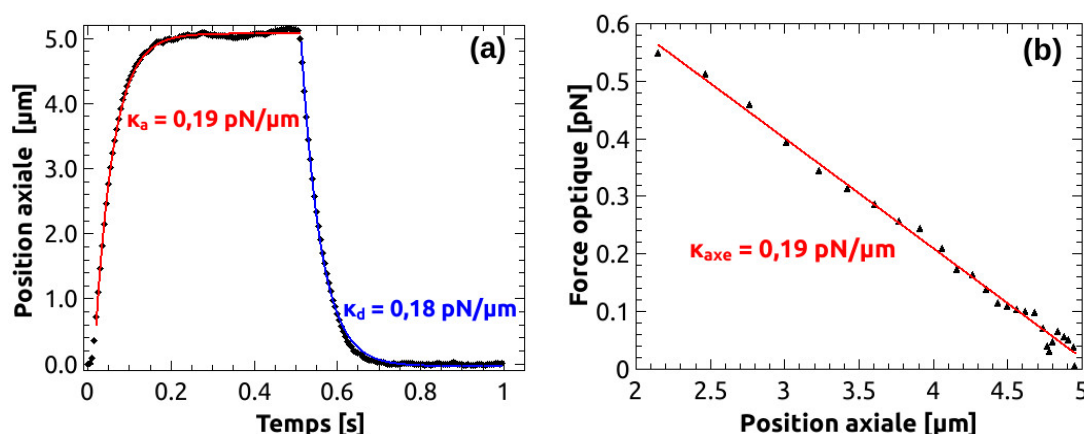


Figure 3.14: (a) Évolution de la position de la particule dans la direction axiale. Les lignes sont des ajustements exponentiels permettant de déterminer κ . (b) Force optique ($\gamma_0 \dot{x}$) mesurée en fonction de la position de la particule. L'ajustement linéaire confirme le modèle harmonique.

En considérant que le mouvement Brownien de la particule est négligeable dans la direction axiale et que le système est sur-amorti, l'équation de Langevin décrite dans l'équation 2.7 se simplifie et s'écrit :

$$\gamma_0 \dot{x}(t) + \kappa x(t) = 0 \quad (3.2)$$

La solution de cette équation différentielle est de la forme $\exp(-x/\tau_t)$ avec $\tau_t = \gamma_0/\kappa$, le temps de transition pour passer d'une position à une autre. Un ajustement

numérique exponentiel nous permet donc de déterminer la raideur du piège. Les raideurs liées à l'aller et au retour de la particule sont quasiment identiques et valent respectivement $\kappa_a = 0,19 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$ et $\kappa_d = 0,18 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$.

Nous pouvons également déduire la force optique appliquée à la particule à partir de sa vitesse. La force est tracée en fonction de la position axiale de la particule sur la Figure 3.14.b. Celle-ci atteint une valeur maximale de $0,55 \text{ pN}$ et diminue linéairement avec la position de la particule. La pente de la droite permet de retrouver la raideur du piège, $\kappa_{axi} = 0,19 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$. Cette valeur est tout à fait comparable aux raideurs mesurées précédemment à partir du mouvement Brownien résiduel de la particule (voir Tab. 3.2). À une distance de $10 \text{ } \mu\text{m}$, nous avons mesuré $\kappa_{axi} = 0,10 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1}$ avec une puissance de $13,3 \text{ mW}$. En normalisant les raideurs en puissance, nous obtenons $7,9$ et $7,5 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$ respectivement avec la modulation et sans la modulation.

Finalement la régression linéaire de la raideur en fonction de la position de la particule confirme que le modèle est harmonique dans la direction axiale puisque $F_{opt} = -\kappa x$.

3.2.3 Système micro-fluidique

Le système micro-fluidique en PDMS détaillé dans la partie 2.1.5 permet non seulement de faciliter le piégeage en dirigeant les particules vers notre pince, mais aussi de mesurer les forces optiques appliquées à la particule dans la direction transverse.

Deux principales expériences sont effectuées dans cet objectif. Dans les deux cas, une microparticule est piégée puis un flux est instauré par le pousse seringue dans la direction transverse à l'axe des pointes.

Lors de la première expérience, le flux est augmenté jusqu'à ce que la particule soit emportée. La force optique est une nouvelle fois déterminée à partir de la force de Stokes (éq 3.1). Dans ce cas, la vitesse de la particule est déterminée à partir du flux nécessaire pour que celle-ci soit emportée. Cette expérience est répétée pour plusieurs intensités de piégeage (Fig. 3.15). Précisons que les pointes sont distantes de $10 \text{ } \mu\text{m}$. Nous mesurons des valeurs qui ont l'ordre de grandeur des forces optiques et nous retrouvons un comportement linéaire en fonction de la puissance optique [85].

La deuxième expérience consiste à appliquer un flux ayant un débit qui augmente linéairement de 5 à $40 \text{ } \mu\text{l min}^{-1}$. Nous étudions alors la position de la particule piégée dans la direction transverse avant que celle-ci ne soit emportée. La vitesse de la particule est déduite à partir du flux appliqué et la force de Stokes est ainsi calculée. Pour cette mesure, $d = 6 \text{ } \mu\text{m}$ et $P = 12,1 \text{ mW}$. La position transverse de la particule est tracée en fonction de la force de Stokes sur la Figure 3.16. Tout d'abord, précisons que les importantes fluctuations sont dues au mouvement Brownien résiduel de la

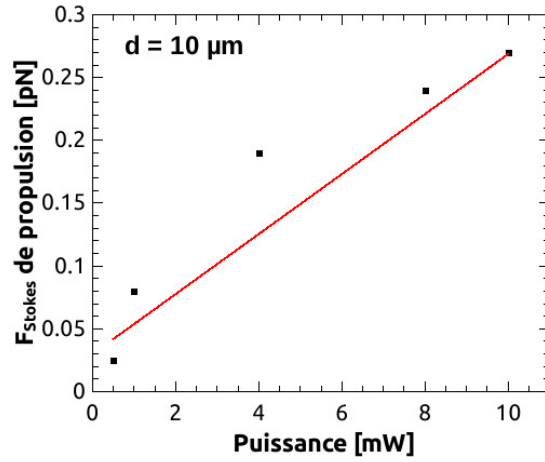


Figure 3.15: Force de Stokes mesurée à l'aide de l'instauration d'un flux qui emporte la particule, en fonction de P .

particule. Ensuite nous remarquons qu'au bout d'un court instant nécessaire pour que le flux entraîne la particule, sa position transversale progresse linéairement avec la force. L'ajustement est réalisé à partir de $F_{stokes} = 0,15$ pN.

Ce résultat confirme que le modèle est également harmonique dans cette direction. La pente nous permet de déterminer la raideur du piège : $\kappa_{tran} = 1,5$ pN μm^{-1} .

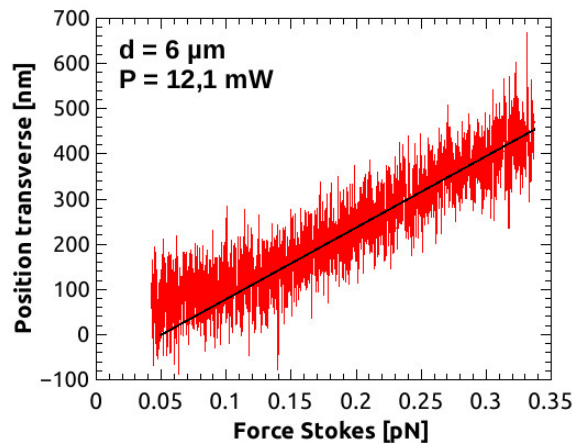


Figure 3.16: Position transverse d'une particule avec l'application d'un flux augmentant linéairement. L'ajustement linéaire permet de déterminer la raideur du piège.

Nous avons effectué des mesures complémentaires de forces optiques en manipulant une microparticule de manière contrôlée, par différentes méthodes. Les méthodes utilisant la propulsion et l'oscillation de la particule permettent de mesurer les forces optiques et les raideurs du piège dans la direction axiale, alors qu'avec l'application d'un flux transverse, nous déterminons les forces optiques dans la direction transverse. Ces méthodes sont donc complémentaires et permettent surtout de confirmer que **notre modèle est réellement harmonique dans les deux directions.**

3.3 Piégeage avec un faisceau de Bessel

La forme du faisceau optique joue un rôle primordial dans le piégeage de particules. En modifiant ce paramètre, les caractéristiques de la pince optique peuvent être complètement différentes. Samir K. Mondal et son équipe ont développé une technique de gravure originale utilisant une action capillaire guidée pour créer des nano-antennes en bout de fibre optique. Ces antennes permettent de convertir des faisceaux Gaussiens en une grande variété de faisceaux optiques tel que des vortex optiques [86], des faisceaux quasi-Bessel ou des faisceaux de Bessel auto-imaginés (“bottle beam”) [61].

Le faisceau quasi-Bessel va particulièrement nous intéresser puisqu'il a la particularité d'être très peu divergent et auto-régénérant (“self healing”). Cela signifie que son front d'onde se reconstruit au cours de la propagation. Par exemple, le faisceau est insensible aux distorsions engendrées par des particules [13]. Ces propriétés sont très intéressantes pour nos expériences de piégeage puisque cela permet d'utiliser notre pince optique avec de très grandes distances entre les pointes [87].

3.3.1 Faisceau de Bessel : description

Le concept d'onde électromagnétique non-diffractive a été introduit en 1987 par J. Durnin [88]. Il explique que son champ électrique se propageant selon l'axe z est de la forme :

$$E(\rho, z, t) = J_0(k'\rho)e^{i(kz - \omega t)} \quad (3.3)$$

avec J_0 la fonction de Bessel d'ordre zéro, $\rho^2 = x^2 + y^2$ les coordonnées radiales et $k' = \sqrt{n^2\omega^2/c^2 - k^2}$, n , ω , c et k étant respectivement l'indice de réfraction du milieu environnant, la pulsation, la vitesse de la lumière et le nombre d'onde.

C'est une onde de Bessel. Elle est non-diffractive puisque son intensité ne varie pas au cours de sa propagation : $I(\rho, z \geq 0) = |E(\rho, z)|^2 = J_0^2(k'\rho)$. Le faisceau de Bessel est

constitué d'une région centrale qui ne diverge pas et qui est entourée par des anneaux concentriques (Fig. 3.17.b). En réalité, il est impossible de créer un faisceau de Bessel parfait puisque cela demanderait une quantité infinie d'énergie. Autrement dit, le faisceau de Bessel parfait possède une infinité d'anneaux concentriques. Cependant, nous pouvons nous en approcher et parlerons plus exactement de faisceau quasi-Bessel.

Le faisceau quasi-Bessel peut être généré en injectant un faisceau Gaussien polarisé linéairement dans une lentille de forme conique, que l'on appelle axicon. Celui-ci introduit un déphasage linéaire en fonction de la position radiale des rayons incidents. Concrètement, l'axicon dévie les rayons parallèles à l'axe optique d'un certain angle. Il en résulte une ligne focale au lieu d'un point que l'on aurait obtenu avec une lentille classique (Fig. 3.17.a).

Nos nano-antennes en bout de fibre jouent le rôle de cet axicon et nous allons maintenant expliquer comment elles sont élaborées.

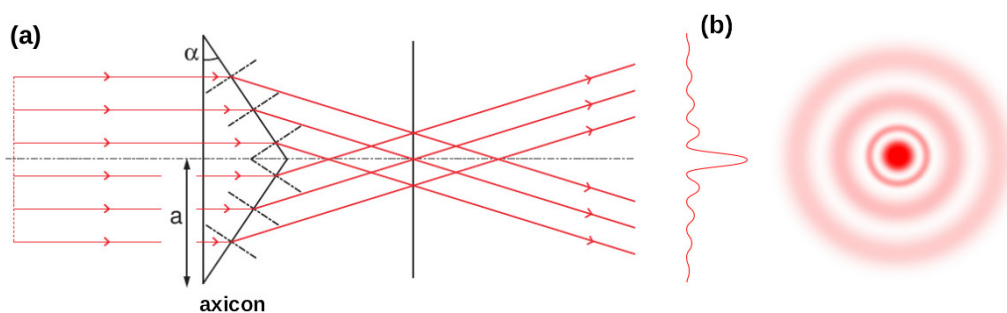


Figure 3.17: (a) Transformation d'un faisceau Gaussien en faisceau de Bessel à l'aide d'un axicon [89]. (b) Profil d'intensité d'un faisceau de Bessel.

3.3.2 Fabrication et caractérisation des nano-antennes

Les nano-antennes sont fabriquées par gravure chimique à partir de fibre optique monomode photosensible. Le mécanisme complet de gravure est détaillé dans les références [90] et [91].

Le principe est le suivant. Un tube recouvert d'un polymère hydrophile est rempli d'une solution d'acide fluorhydrique (HF) à 48 %, utilisée pour la gravure des fibres. Un ménisque convexe se forme dans le tube (Fig. 3.18.a). Les fibres y sont ensuite plongées, impliquant la suppression du ménisque convexe, grâce à la formation d'un ménisque de tension de surface concave autour de la fibre. De la même manière que la gravure développée à l'Institut Néel (détaillée dans la partie 2.2.1), le HF dissout la silice et réduit le diamètre de la fibre, entraînant la réduction du ménisque concave le long de celle-ci. Cela provoque ainsi l'augmentation du ménisque convexe et une vitesse de gravure plus rapide au niveau du cœur de la fibre. Un anneau capillaire est

alors creusé le long de l'interface cœur/gaine de la fibre. Le HF remplit cet anneau par capillarité et crée enfin une nano-pointe au sommet de la fibre (Fig. 3.18.b).

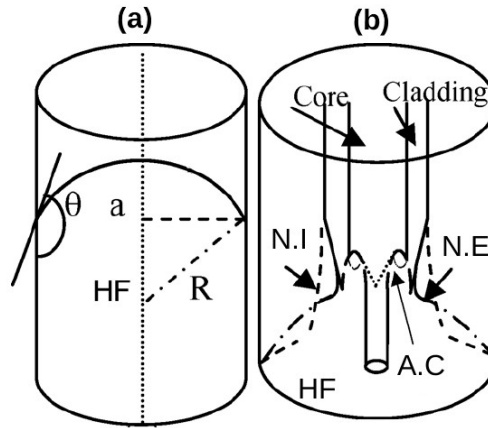


Figure 3.18: Étapes de la gravure des nano-antennes. (a) Solution de HF dans le tube avec le ménisque convexe. (b) La fibre est plongée dans le tube. Les pointillés régulés représentent le niveau initial (N.I) du HF. Les autres pointillés montrent le niveau du HF qui s'élève (N.E) pendant la gravure. Un anneau capillaire (A.C) est creusé et crée la nano-antenne. [91]

Une fibre gravée en nano-antenne est présentée sur la Figure 3.19. La dynamique de croissance sous l'action capillaire crée une certaine courbure au niveau de la nano-antenne. Celle-ci mesure typiquement $4 \mu\text{m}$ de long avec un sommet $< 100 \text{ nm}$ de diamètre et un angle complet moyen d'environ 38° . La courbure pour une antenne de cette dimension influence fortement la sortie des modes optiques de l'antenne.

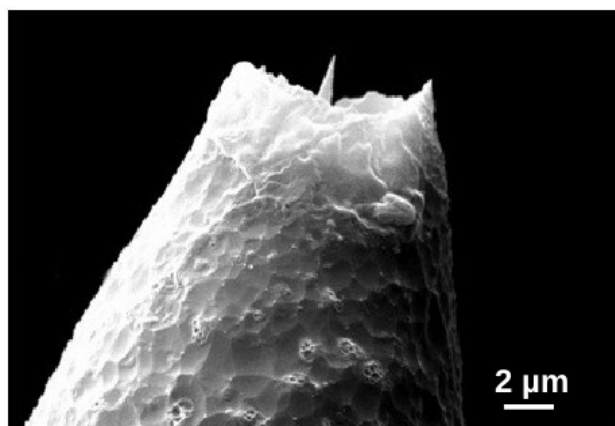


Figure 3.19: Image MEB d'une fibre optique gravée en forme de nano-antenne.

Dans un premier temps, nous visualisons l'émission des antennes en plaçant un écran à quelques centimètres de celles-ci (Fig. 3.20.a). Sur cet exemple, nous remarquons la présence de franges circulaires qui sont caractéristiques du faisceau quasi-Bessel.

Nous caractérisons également les propriétés d'émission des nano-antennes en réalisant des cartes d'intensité en transmission dans l'eau. Pour cela, le faisceau laser est injecté dans la nano-antenne à étudier et balaie une pointe d'angle constant fabriquée à l'Institut. Nous appellerons cette dernière "pointe droite" dans la suite de ce chapitre. Le signal transmis entre les deux fibres est enregistré pour plusieurs distances entre les pointes. Nous observons un spot central de forme quasi-Gaussien (insert Fig. 3.20.b). Nous ne visualisons pas les anneaux concentriques. Pour mesurer le waist du faisceau, nous approximations sa forme avec une fonction Gaussienne. Les valeurs sont corrigées en prenant en compte les deux fibres, comme expliqué dans la partie 2.2.2.

Le waist minimal du faisceau est d' $1,4 \mu\text{m}$, soit presque le double de la longueur d'onde. Il progresse linéairement pour des distances supérieures à $15 \mu\text{m}$ (Fig. 3.20.b). Nous mesurons un angle de divergence de $4,5^\circ$ dans l'eau correspondant à une ouverture numérique $N.A. = 0,05$. Cet angle est environ deux fois plus petit, comparé à la divergence des pointes droites (voir Fig. 2.16.a). Ces mesures confirment que le faisceau émis par la nano-antenne diffracte moins qu'un faisceau Gaussien standard.

Pour des plus faibles distances, la divergence du faisceau n'est plus linéaire et son waist est à peu près constant. Comme nous le verrons dans le prochain paragraphe, un piégeage stable et efficace de microparticules est observé seulement pour des distances supérieures à $15 \mu\text{m}$.

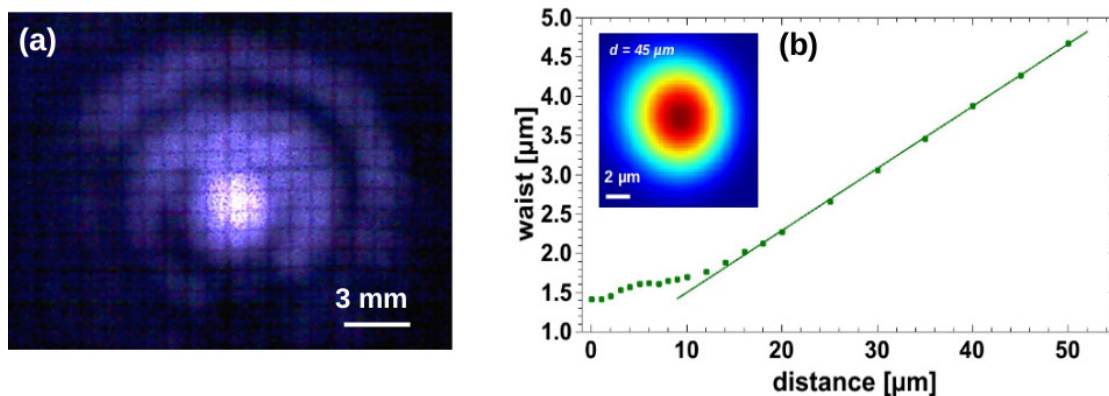


Figure 3.20: (a) Émission d'une nano-antenne. (b) Évolution du waist mesuré à partir des cartes d'intensité en transmission entre une nano-antenne et une pointe droite, en fonction de la distance entre les pointes. Insert : Carte en transmission ($d = 45 \mu\text{m}$).

3.3.3 Piégeage de microparticules

Une nano-antenne

En utilisant une seule nano-antenne, nous observons clairement deux régimes où les particules se comportent différemment. Pour une distance antenne - particule inférieure à $10\ \mu\text{m}$, les particules sont attirées jusqu'à la fibre et se collent par force de Van Der Waals. Pour des distances supérieures à $15\ \mu\text{m}$, elles sont propulsées par la force de diffusion dans la direction du faisceau. Nous n'avons pas pu piéger optiquement avec une seule nano-antenne, comme ce fut brièvement le cas avec les pointes droites (Fig. 3.10).

À partir de la trajectoire de la particule expulsée, nous mesurons sa vitesse (insert Fig. 3.21). La particule atteint une vitesse maximale de $145\ \mu\text{m s}^{-1}$ en moins de 70 ms. La vitesse décroît ensuite en $1/d^2$, avec d la distance entre la particule et la pointe. Cette décélération était déjà de cette forme avec une pointe droite (Fig. 3.11.a). La différence ici est que la particule est propulsée à partir d'une plus grande distance. La force optique est déterminée à partir de la force de Stokes (éq. 3.1). Nous mesurons une force optique maximale de $1,7\ \text{pN}$ appliquée à la particule se trouvant à $\sim 20\ \mu\text{m}$ de la pointe. La puissance optique étant de $20\ \text{mW}$, la force normalisée est de $85\ \text{pN W}^{-1}$. En comparaison, dans le cas de la propulsion d'une particule avec une pointe droite, nous avons mesuré une force optique normalisée d'environ $77\ \text{pN W}^{-1}$, avec la particule se trouvant à moins d' $1\ \mu\text{m}$ de la pointe. Ces mesures montrent que les nano-antennes permettent d'appliquer des forces optiques du même ordre de grandeur, mais à des distances beaucoup plus grandes.

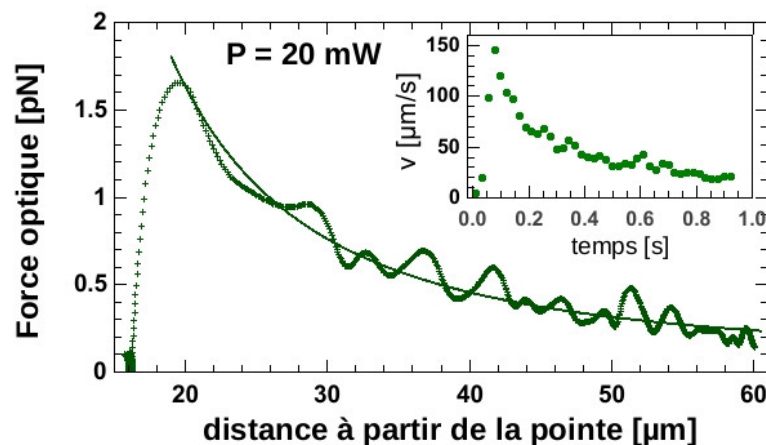


Figure 3.21: Forces optiques mesurées à partir de la vitesse d'une particule éjectée par la lumière émise à partir d'une nano-antenne. La ligne est un ajustement en $1/d^2$.

Deux nano-antennes à grande distance

En positionnant deux nano-antennes en face à face, nous avons piégé de manière stable une à cinq particules pour des distances beaucoup plus grandes que celles utilisées avec des pointes droites. Sur la Figure 3.22, nous avons piégé de une à trois particules avec $d = 32,5 \mu\text{m}$ entre les pointes et $P = 9 \text{ mW}$ [87]. Notons que le piégeage reste efficace avec $P \approx 1 \text{ mW}$.

Les particules sont piégées à trois positions distinctes, à gauche, à droite et au centre des pointes. Tout d'abord, nous observons que les particules trop proches des pointes sont attirées et collées sur celles-ci, comme observé précédemment. Cependant nous constatons que ces particules ont une influence mineure sur les propriétés de piégeage.

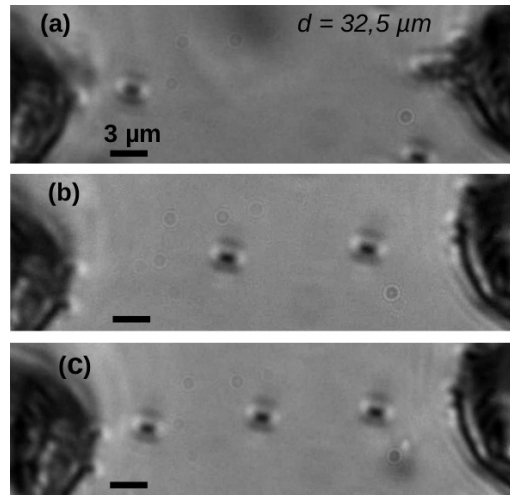


Figure 3.22: (a)-(c) Piégeage d'1, 2 et 3 microparticules entre deux nano-antennes distantes de $d = 32,5 \mu\text{m}$. $P = 9 \text{ mW}$.

Les tracés individuels en position des trois particules dans les directions axiale et transverse sont présentés sur la Figure 3.23.a. Comme avec les pointes droites, les fluctuations en position sont beaucoup plus faibles dans la direction transverse que dans la direction axiale. Nous remarquons que les fluctuations des particules latérales sont assez similaires avec des oscillations d'environ $1 \mu\text{m}$ d'amplitude dans la direction axiale (ligne claire). Quant à celles de la particule centrale, elles oscillent sur près de $3 \mu\text{m}$. Le pic étroit présent à $1,5 \text{ s}$ sur le tracé de la particule de gauche correspond au remplacement d'une particule par une autre. Cette nouvelle particule se place exactement au même endroit que la précédente, prouvant que les positions spatiales de piégeage sont clairement définies.

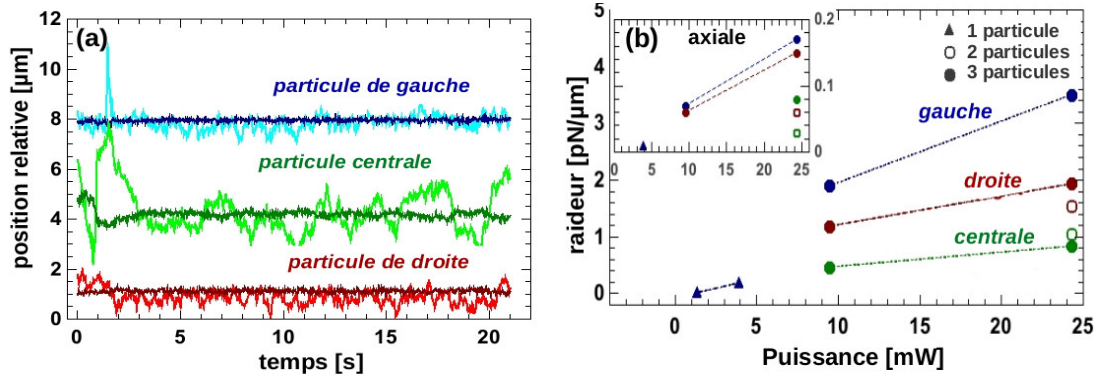


Figure 3.23: (a) Fluctuation temporelle des trois particules dans la direction axiale (ligne claire) et transverse (ligne sombre). (b) Raideur dans la direction transverse et longitudinale (insert) en fonction de P .

Le piège optique est caractérisé en utilisant la statistique de Boltzmann. Les distributions sont de formes Gaussiennes dans la direction transverse. Dans la direction axiale, il y a parfois l'apparition d'un pic supplémentaire. Cela signifie qu'il peut y avoir deux positions métastables de piégeage. Les raideurs optiques κ appliquées aux trois particules dans la direction axiale et transverse sont tracées en fonction de la puissance sur la Figure 3.23.b.

Nous constatons que κ dépend fortement de la position de la particule piégée. Comme nous pouvions nous y attendre en regardant les tracés, la position centrale présente une efficacité de piégeage plus faible comparé aux deux autres. Cependant, nous nous attendions à ce que la raideur des deux particules latérales soient identiques. Ce n'est pas le cas puisque le piège de gauche est plus efficace que celui de droite. Cela peut être dû à la forme des pointes qui n'est pas exactement identique et de ce fait, les fibres n'émettent pas tout à fait de la même manière.

Enfin, κ augmente avec la puissance et nous mesurons des valeurs normalisées de 50 à 200 $\text{pN } \mu\text{m}^{-1} \text{W}^{-1}$ dans la direction transverse, avec une distance de 32,5 μm entre les pointes. Avec des pointes droites, nous avons mesuré une raideur de 62 $\text{pN } \mu\text{m}^{-1} \text{W}^{-1}$ dans la direction transverse (Fig. 3.7), avec une distance quasiment trois fois plus courte (11,5 μm). Cela prouve l'efficacité de notre pince en utilisant des nano-antennes.

Dans le but d'évaluer les limites de la pince, nous avons largement augmenté la distance entre les antennes. En atteignant $d = 65 \mu\text{m}$, nous constatons que le piégeage reste très efficace. Il a même été possible de piéger davantage de particules. Nous avons piégé simultanément de deux à cinq particules pendant plusieurs minutes, avec une puissance de 24 mW (Fig 3.24). Une nouvelle fois, la position des particules est

clairement définie. Elles se placent environ à équidistance le long de l'axe optique. La taille de ces particules étant du même ordre de grandeur que λ , nous retrouvons le résultat de la référence [65] où l'auto-organisation de particules diélectriques piégées avec des faisceaux Gaussiens est étudiée.

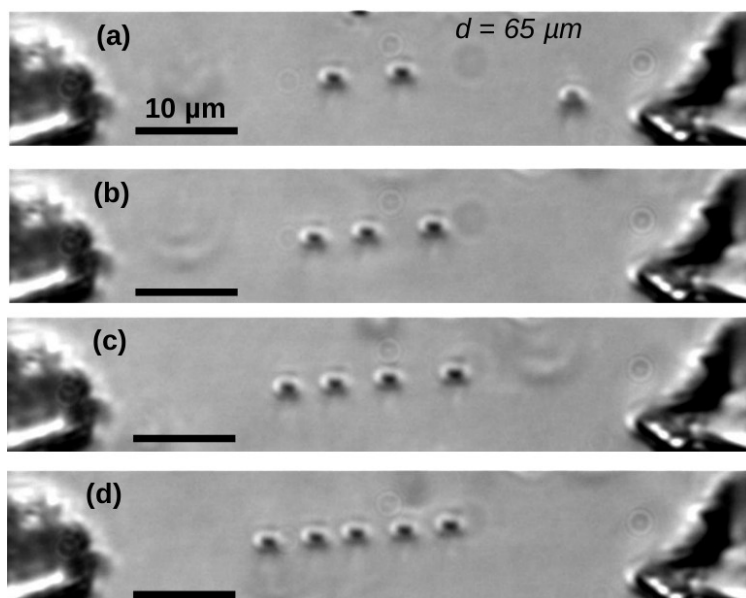


Figure 3.24: (a)-(d) Piégeage de 2 à 5 microparticules entre deux nano-antennes distantes de $d = 65 \mu\text{m}$. $P = 24 \text{ mW}$.

Le faisceau quasi-Bessel a des propriétés très intéressantes pour le piégeage. Il a la particularité d'être très peu divergent et auto-régénérant. Nous avons utilisé des fibres gravées en forme de nano-antennes et émettant des faisceaux quasi-Bessel pour piéger des microparticules. Nous avons piégé jusqu'à 5 particules simultanément, avec des distances inter-fibres pouvant être triplées par rapport au piège avec des pointes droites (jusqu'à $65 \mu\text{m}$). Nous avons également observé que les positions spatiales de piégeage étaient clairement définies. Nous avons mesuré des raideurs de 50 à $200 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$, dépendamment de la position de la particule piégée. Ces valeurs prouvent l'efficacité de la pince optique en utilisant des nano-antennes.

3.4 Conclusion

En résumé, nous avons démontré que notre pince optique fibrée était efficace et très bien adaptée pour le piégeage de microparticules. L'analyse du mouvement Brownien résiduel de la particule piégée a permis de déterminer les raideurs optiques en utilisant les trois méthodes : la statistique de Boltzmann, l'analyse fréquentielle et l'autocorrélation. Nous avons vu que l'efficacité de piégeage dépendait fortement de la puissance optique P émise par les pointes et de la distance d entre celles-ci. La raideur de piégeage augmente linéairement avec P et décroît en $1/d^2$.

En effectuant des mesures complémentaires telles que la propulsion d'une particule par une pointe, la modulation en intensité ou l'injection d'un flux dans la cellule, nous avons démontré que le potentiel de piégeage était bien de forme harmonique dans les directions axiale et transverse.

Enfin, le remplacement des pointes fabriquées à l'Institut Néel par des nano-antennes émettant des faisceaux quasi-Bessel ont permis de modifier les caractéristiques de la pince. Nous avons piégé efficacement de multiples particules avec de très grandes distances. Ces résultats montrent également que notre pince est adaptable puisque nous pouvons facilement changer les pointes en fonction de l'expérience à réaliser.

CHAPITRE 4

Piégeage de nanoparticules

4.1	Élaboration des particules de YAG :Ce³⁺	94
4.1.1	Synthèse	95
4.1.2	Caractérisation	99
4.2	Piégeage des particules de YAG :Ce³⁺	104
4.2.1	Particules de 300 nm	104
4.2.2	Particules de 60 nm	111
4.3	Influence du volume sur les forces optiques	114
4.4	Simulations	117
4.4.1	Modèle avec une fibre	117
4.4.2	Modèle avec deux fibres	119
4.5	Nanobatônnets de NaYF₄ :Er/Yb/Gd	120
4.5.1	Synthèse et caractérisation	120
4.5.2	Piégeage et spectroscopie de luminescence	122
4.6	Conclusion	124

Nous avons démontré l'efficacité de notre pince optique pour le piégeage de particules de taille micrométrique. Nous souhaitons par la suite réduire la taille des particules pour atteindre l'échelle nanométrique. Piéger des nanoparticules est un véritable défi. En effet, les forces optiques appliquées sont beaucoup plus faibles et il faut donc un piégeage très efficace. La maîtrise de la manipulation des nanoparticules est très intéressante pour des applications telles que des études spectroscopiques de nanoparticules uniques et libres sans qu'il y ait l'influence d'un substrat. C'est également une étape primordiale pour la réalisation d'une pince plasmonique.

Nous avons choisi d'étudier des nanoparticules qui sont luminescentes pour deux raisons : tout d'abord pour pouvoir les visualiser avec notre microscope optique,

ensuite parce que nous souhaitons réaliser de la spectroscopie de luminescence sur des particules piégées optiquement. Ce dernier point est intéressant pour étudier le rendement interne de luminescence d'une particule individuelle en suspension, par exemple.

Dans ce chapitre, nous verrons que nous avons décidé d'étudier des nanoparticules de YAG:Ce³⁺. Nous commencerons par présenter leur synthèse et leur caractérisation que nous avons réalisé au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée (PMC, Polytechnique, Palaiseau) partenaire du projet FiPlaNT¹. Ensuite, nous étudierons et analyserons leur piégeage en utilisant notre pince optique. Des particules de YAG:Ce³⁺ ayant deux tailles bien différentes sont considérées : des particules mesurant environ 300 nm de diamètre afin de les observer et piéger plus facilement puis de 60 nm dans le but d'évaluer les limites de notre approche de pince optique fibrée non métallisée.

Nous caractériserons ensuite le piégeage de billes luminescentes commerciales de polystyrène de différentes tailles bien définies, afin d'étudier l'évolution de la raideur optique en fonction de la taille des particules piégées.

Dans la suite de ce chapitre, nous détaillerons des simulations numériques qui ont été réalisées par nos partenaires Francisco J. Valdivia-Valero et Gérard Colas des Francs du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, dans le cadre du projet FiPlaNT.

Enfin, nous terminerons par l'étude d'un système bien différent : des nano-batônnets de NaYF₄. Nous avons choisi ces particules pour leur forme non-sphérique et leur propriété d'émission de type up-conversion. Elles sont élaborées par Maud Thiriet dans le cadre de ses travaux de thèse à PMC. Des expériences de spectroscopie de luminescence sur particules piégées ont été réalisées par Rui Zhu lors de son stage de Master à l'Institut Néel [92]. Des études sur particules uniques seront également réalisées dans l'air par microscopie confocale à PMC par Godefroy Leménager (non-présentées dans ce manuscrit).

4.1 Élaboration des particules de YAG:Ce³⁺

Nous avons étudié des nanoparticules de grenats d'yttrium d'aluminium (Y₃Al₅O₁₂) dopés avec des ions cerium trivalent, que l'on note plus simplement YAG:Ce³⁺. Nous avons choisi ce système pour les raisons suivantes :

- Il possède d'excellentes propriétés optiques : une bonne section efficace d'absorption, un bon rendement quantique de luminescence et une excellente photostabilité.

1. ANR-12-BS10-002

- Les particules sont stables dans l'eau et restent en suspension pendant plusieurs heures.
- Leur distribution en taille est bien définie.
- Leur synthèse est parfaitement maîtrisée au laboratoire PMC.

Durant ces travaux de thèse, j'ai eu l'opportunité d'effectuer plusieurs séjours à PMC afin de synthétiser ces particules que nous avons ensuite étudié avec la pince optique de l'Institut Néel.

4.1.1 Synthèse

Synthèse à haute température

Dans un premier temps, nous avons synthétisé des particules de YAG:Ce³⁺ en utilisant la voie classique à "haute température". Cette technique traditionnelle permet d'obtenir des poudres de taille micrométrique par réaction solide à très haute température. Elle consiste à mélanger finement les poudres d'oxydes précurseurs (Al₂O₃, Y₂O₃ et CeO₂) en présence d'un fondant (typiquement BaF₂) puis de les recuire à 1550 °C. La poudre obtenue est broyée mécaniquement en milieu liquide afin de réduire la taille des grains de YAG:Ce³⁺ puis lavée et remise en suspension dans l'eau. Les détails de fabrication et la caractérisation de ces particules se trouvent en Annexe A.

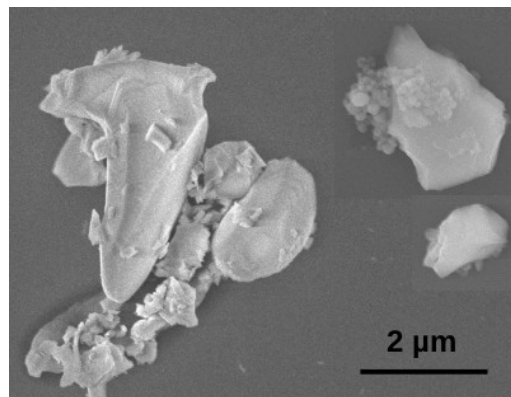


Figure 4.1: Image MEB de particules de YAG:Ce³⁺ synthétisées par réaction solide à haute température.

Une image réalisée au MEB de quelques particules obtenues par cette méthode est présentée sur la Figure 4.1. Nous constatons que les cristaux sont de taille très variable avec des formes facettées. Il a été démontré dans de précédents travaux que le broyage mécanique pouvait permettre de réduire considérablement la taille des

grains, comme dans le cas du matériau YVO_4 par exemple [93]. Cependant, il semble que le YAG soit un matériau trop dur pour que cette méthode soit efficace.

Malgré d'excellentes propriétés optiques (rendement quantique d' $\sim 85\%$), les suspensions de microparticules sont très instables dans l'eau. Elles sédimentent en quelques minutes au fond du récipient sous leur poids. Ces particules ne sont de ce fait pas adaptées pour nos expériences de piégeage et une autre synthèse est considérée.

Synthèse glycothermale

Des particules de $YAG:Ce^{3+}$ en suspension peuvent être synthétisées par voie glycothermale. Cette technique utilise un autoclave pour atteindre des pressions élevées. Elle permet la cristallisation de la phase YAG à une température relativement basse ($300\text{ }^\circ\text{C}$) comparée à la synthèse à haute température décrite précédemment ($1550\text{ }^\circ\text{C}$). Cela permet de limiter la croissance des grains et d'obtenir ainsi des particules de taille nanométrique. Il est possible d'obtenir des particules avec des tailles allant de quelques centaines à la dizaine de nanomètres. Cette procédure de fabrication a été développée en 1995 [94] et adaptée en 2006 avec du $YAG:Ce^{3+}$ [95]. Cette technique est mise en place au laboratoire PMC dans le cadre de la thèse d'Amélie Revaux [96].

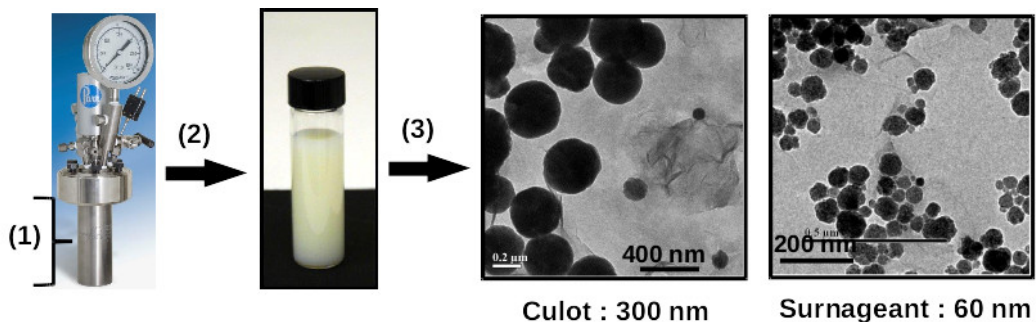


Figure 4.2: Schéma résumant le protocole de synthèse glycothermale des particules de $YAG:Ce^{3+}$. (1) Mélange d'isopropoxide d'aluminium, d'acétate d'yttrium et de cérium dans du butanediol. (2) Synthèse sous auto-clave à 300°C pendant 3 h. (3) Tri en taille par centrifugation. Images MEB des particules se trouvant dans le culot et le surnageant. [97]

Le protocole permettant d'obtenir des nanoparticules de YAG dopées avec 2% de Cérium (en mole) est illustré sur la Figure 4.2. Nous mélangeons 2,554 g d'isopropoxide d'aluminium, 1,956 g d'acétate d'yttrium et 47,6 mg d'acétate de cérium (III) avec 53 mL de 1,4 butanediol pour respecter les proportions stœchiométriques. Le mélange est alors versé dans un autoclave qui est placé dans un manteau chauffant. Le système est chauffé à 250 ou $300\text{ }^\circ\text{C}$ pendant plusieurs heures avec agitation permanente par

un barreau aimanté. La pression atteint entre 20 et 40 bars à l'intérieur de l'enceinte selon les conditions du recuit. La solution obtenue après synthèse est ensuite nettoyée à l'éthanol puis à l'eau avec 3 centrifugations successives à 11000 rpm pendant 20 à 30 minutes. Cela permet de retirer le butanediol et les gros agrégats de particules. Nous obtenons alors une suspension colloïdale de couleur jaunâtre (Fig. 4.2).

Enfin, les particules sont triées en taille en appliquant 3 nouvelles centrifugations beaucoup plus courtes (11000 rpm pendant 1 min). De cette manière, les plus gros objets tombent plus rapidement et se retrouvent dans le culot alors que les plus petits se situent proche de la surface, dans le surnageant de la solution. Ainsi en prélevant séparément le culot et le surnageant, nous obtenons des colloïdes de deux tailles très différentes, ce qui est intéressant pour les expériences de piégeage.

En premier lieu, nous avons voulu synthétiser les plus grosses particules de plusieurs centaines de nanomètres pour créer une transition entre les particules de taille micrométrique déjà étudiées et celles de taille nanométrique. Nous avons réalisé plusieurs synthèses glycothermales en modifiant les conditions du recuit (température ou durée du chauffage), le but étant d'augmenter la taille des particules et d'optimiser la cristallinité.

La synthèse glycothermale retenue a finalement été obtenue avec un recuit à 300 °C sous auto-clave pendant 3 h. Les particules sont triées en taille par centrifugation courte et rapide (1 min à 11000 rpm).

Recuit protégé

Comme cela a été démontré dans de précédents travaux [98], l'inconvénient majeur de cette synthèse est que les nanoparticules obtenues ne sont pas photostables et photoblanchissent. Cela est dû à un phénomène de photo-oxydation. Les ions Ce³⁺ de degré d'oxydation III se trouvant à la surface des particules réagissent avec le dioxygène de l'air environnant et sont convertis en Ce⁴⁺ de degré d'oxydation IV, ici non luminescent.

Pour améliorer la photostabilité des particules, il est nécessaire de limiter la sensibilité des ions Ce³⁺ à l'oxydation. L'objectif est donc de réduire la porosité des particules afin de limiter la proportion d'ions Ce³⁺ à la surface. Pour ce faire, nous procédons à un recuit à haute température. Afin d'éviter que les particules ne croissent durant le recuit, nous utilisons une méthode originale développée au laboratoire PMC qui consiste à réaliser un recuit protégé dans une matrice de silice [99].

Le procédé a été adapté aux particules de YAG:Ce³⁺ pendant les travaux de thèse d'A. Revaux [96]. Le principe est schématisé sur la Figure 4.3. Les nanoparticules élaborées

par voie glycothermale sont incorporés dans une matrice de silice mésoporeuse. Celle-ci est produite par un procédé sol-gel, permettant la dispersion des nanoparticules dans le sol précurseur de silice avant condensation de la matrice. Le tout est mélangé avec un agent structurant lui donnant sa porosité. L'intérêt de la porosité dans la matrice est de faciliter sa dissolution lors du traitement avec de l'acide fluorhydrique (HF).

Cette matrice de silice permet de recuire les particules à haute température sans qu'elles puissent coalescer et grossir. Le système est alors recuit à 1000 °C à l'air pendant 12 h suivi d'un second recuit à 600 °C pendant 12 h sous atmosphère réductrice (H₂/Ar). Ce dernier recuit permet de convertir les ions Ce⁴⁺ éventuels obtenus par oxydation en ions Ce³⁺ luminescents. La matrice de silice est ensuite dissoute par du HF à 5 % pendant 3 heures. Enfin, nous appliquons deux centrifugations successives (pendant 2 puis 10 minutes à 13000 rpm) pour redisperser les particules recuites dans l'eau.

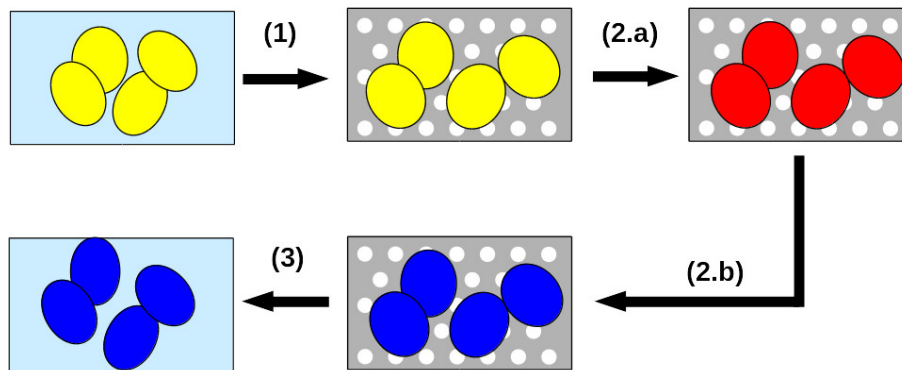


Figure 4.3: Étapes du recuit protégé : (1) Nanoparticules de YAG:Ce³⁺ incorporées dans une matrice de silice ; (2.a) Traitement thermique à 1000°C à l'air pendant 12 h, (2.b) puis à 600°C pendant 12 h sous H₂/Ar ; (3) Dissolution de la silice par traitement HF puis redispersion dans l'eau.

Jusqu'à présent, ce recuit protégé n'avait été réalisé que pour des petites particules de quelques dizaines de nanomètres. Ce travail a permis de montrer qu'il fonctionne également pour des particules de plusieurs centaines de nanomètres, ce qui n'était pas garanti. En effet, nous aurions pu penser que la dispersion de la matrice de silice ne serait pas aussi efficace au vu de la taille des particules.

4.1.2 Caractérisation

Diffraction des rayons X

Les particules sont caractérisées par diffraction des rayons X (DRX) afin de contrôler les phases présentes. La Figure 4.4 présente le diagramme de DRX des nanoparticules avant et après recuit dans la matrice de silice. Les traits rouges correspondent à la position des pics de référence pour la phase YAG. Nous remarquons que dans les deux cas, la phase YAG est bien présente sans aucune autre phase parasite. Cependant une large bande apparaît au niveau des petits angles dans le cas où les particules ont été recuites. Elle est dûe à la phase amorphe de la matrice en silice, la mesure étant prise avant la dissolution de celle-ci.

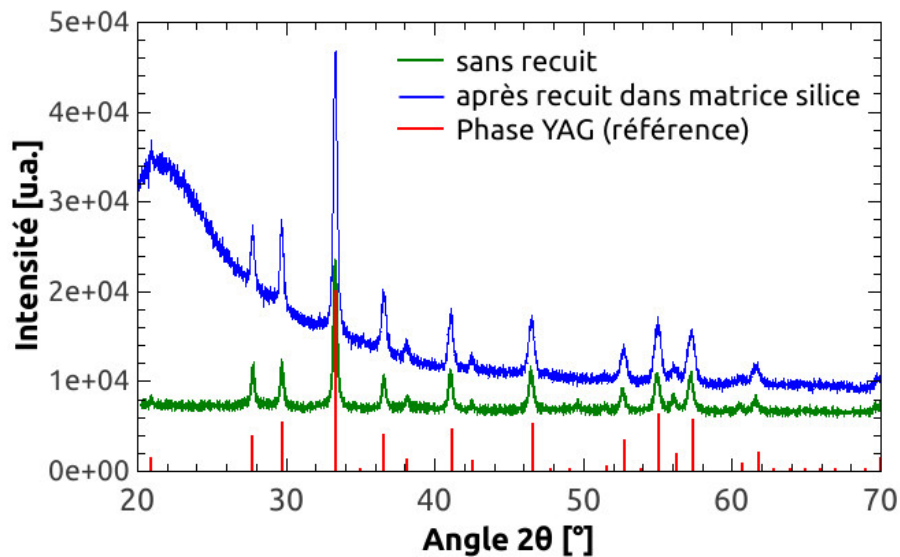


Figure 4.4: Diagramme de DRX de nanoparticules de YAG:Ce³⁺ avant (courbe verte) et après recuit protégé dans une matrice de silice (bleue). Les lignes verticales rouges correspondent à la position des pics attendue pour la phase YAG.

À partir de ces diagrammes, nous pouvons calculer la taille des cristallites à l'aide de la formule de Scherrer :

$$D = \frac{K \cdot \lambda}{FWHM \cdot \cos \theta} \quad (4.1)$$

avec K la constante de Scherrer qui dépend de la morphologie des cristallites et qui vaut 0,9 pour des cristallites sphériques, λ la longueur d'onde de la raie $K\alpha$ du cuivre : 1,54 Å, $FWHM$ la largeur à mi-hauteur du pic de diffraction et θ l'angle de

diffraction.

Nous calculons des tailles de cristallites de 28 nm pour les particules prélevées dans le culot non recuites et 23 nm pour celles qui sont recuites. Ces tailles sont inférieures à ce que nous avons observé au MEB et au MET. Cela signifie donc que les particules sont polycrystallines.

Microscopie électronique et DDL

La taille des particules est un paramètre important à connaître pour les expériences de piégeage. Elle peut être mesurée de deux manières différentes : par visualisation directe en utilisant la microscopie électronique à balayage et en transmission (MEB et MET) ou par mesure indirecte en utilisant la diffusion dynamique de la lumière (DDL).

Cette dernière méthode permet de déterminer la taille des particules en solution en mesurant les variations aléatoires d'intensité de la lumière diffusée par la suspension colloïdale, qui est soumise au mouvement Brownien. Le diamètre hydrodynamique d_H de la particule s'écrit avec la relation de Stokes-Einstein de la manière suivante :

$$d_H = \frac{k_B T}{3\pi\eta D} \quad (4.2)$$

avec k_B la constante de Boltzmann, T la température, η la viscosité dynamique du milieu et D le coefficient de diffusion transversal mesuré par DDL. Le diamètre hydrodynamique des particules en suspension dans le surnageant est de 70 ± 10 nm alors que dans le culot, la DDL nous donne une taille de 430 ± 100 nm.

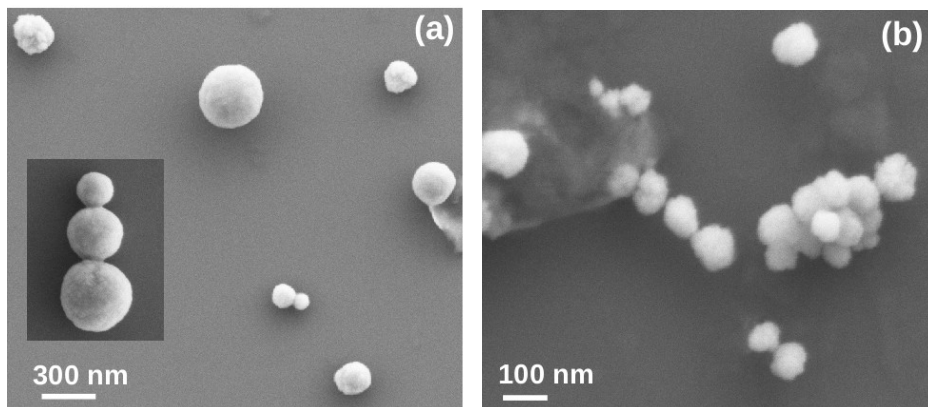


Figure 4.5: Images MEB de nanoparticules de YAG:Ce³⁺ du culot (a) et du surnageant (b).

Le MEB permet de nous donner une première idée sur l'aspect et la taille des particules. La Figure 4.5 présente des images MEB de particules de YAG:Ce³⁺ prélevées dans le culot et dans le surnageant après recuit. Comme attendu, nous observons que les particules sont plus grandes dans le culot que dans le surnageant. Elles sont également moins monodispersées : nous observons également des plus petites particules qui devaient déjà être présentes au fond du tube avant l'étape de centrifugation. Nous retrouvons qualitativement ce que nous avons mesuré par DDL.

Le MET permet d'observer les particules avec une résolution atomique (Fig. 4.6). Nous pouvons ainsi examiner leur morphologie et observer les plans atomiques. La visualisation des figures de diffraction des électrons dans le plan de Fourier permet de constater que les particules recuites sont bien cristallisées.

Nous observons la présence de pores circulaires assez conséquents, très bien visibles au niveau des particules recuites du surnageant (Fig. 4.6.b). Ceux-ci sont dus à la diffusion de la porosité des particules initiales à l'intérieur de celles-ci pendant le recuit à haute température. Les pores se situent bien au cœur des particules et non en surface, ils ne devraient donc pas affecter la photostabilité. Nous n'observons pas ces pores au niveau des particules prélevées dans le culot (Fig. 4.6.a). Peut être est-ce dû à un problème d'imagerie, les plus grosses particules ayant un contraste trop important pour observer en détail leur morphologie, ou alors ces particules sont initialement moins poreuses.

Enfin, nous remarquons une fine membrane qui encapsule les particules (insert Fig. 4.6.a). Elle correspond à de la silice résiduelle qui persiste après le traitement HF.

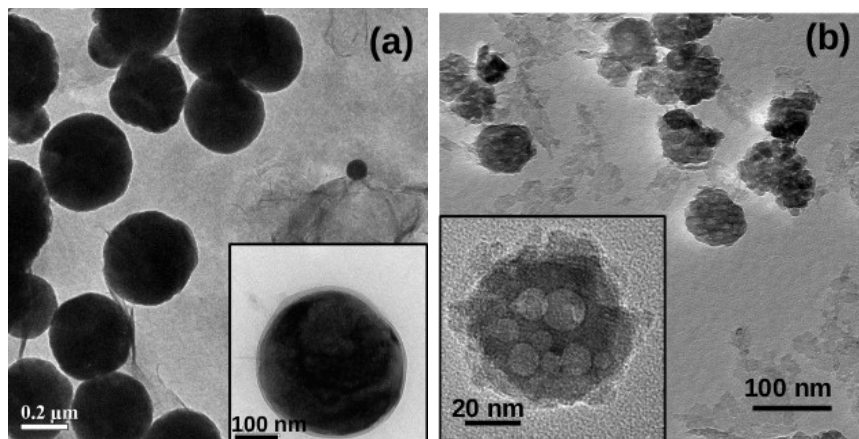


Figure 4.6: Images MET de nanoparticules de YAG:Ce³⁺ du culot (a) et du surnageant (b) après recuit protégé.

Afin d'avoir une meilleure idée sur la taille des particules, nous avons réalisé des distributions statistiques en taille à partir des images MET (Fig. 4.7). Les particules se trouvant dans le culot ont un diamètre compris entre 200 et 370 nm avec une probabilité maximale de mesurer 275 nm (Fig. 4.7.a). Dans le surnageant, nous retrouvons comme prévu par les travaux d'A. Revaux, des particules plus petites allant de 20 à 80 nm avec une probabilité maximale de 55 nm (Fig. 4.7.b). La sélection en taille a donc été efficace et nous disposons de deux solutions de nanoparticules de YAG:Ce³⁺ recuites de taille moyenne de 55 ± 40 nm et 280 ± 100 nm.

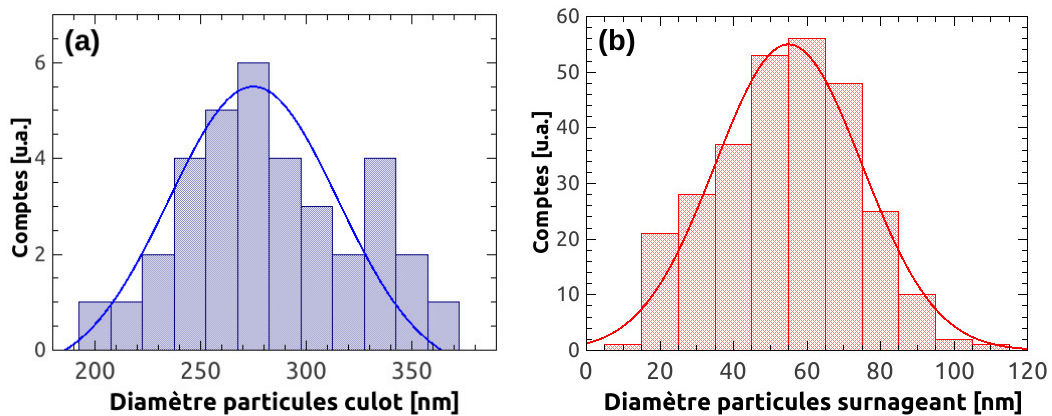


Figure 4.7: Distribution statistique en taille des particules de YAG:Ce³⁺ dans le culot (a) et dans le surnageant (b). Les courbes correspondent à des ajustement Gaussiens.

Caractérisation optique

Les spectres d'absorption et d'émission des particules de YAG:Ce³⁺ en suspension avant et après recuit protégé sont présentés sur la Figure 4.8. Dans les deux cas, deux pics d'absorption sont observés à 340 et 450 nm, associés respectivement aux transitions du Ce³⁺ $4f \Rightarrow 5d(^2B_{1g})$ et $4f \Rightarrow 5d(^2A_{1g})$ (insert Fig. 4.8).

Nous constatons que la bande d'absorption centrée à 450 nm est plus étroite lorsque les particules sont recuites, ce qui peut poser des problèmes lors de l'excitation. Un large et intense pic d'émission est obtenu dans le domaine du visible entre 500 et 600 nm dû à la transition $5d \Rightarrow 4f$, ce qui explique la couleur jaunâtre de la suspension.

Afin d'estimer quantitativement la luminescence des particules, nous avons effectué des mesures de rendement quantique en sphère intégrante¹. Cet outil permet de détecter la luminescence émise par les particules dans toutes les directions. Ces mesures

1. Jobin-Yvon, Fluoromax 4 équipé d'une sphère

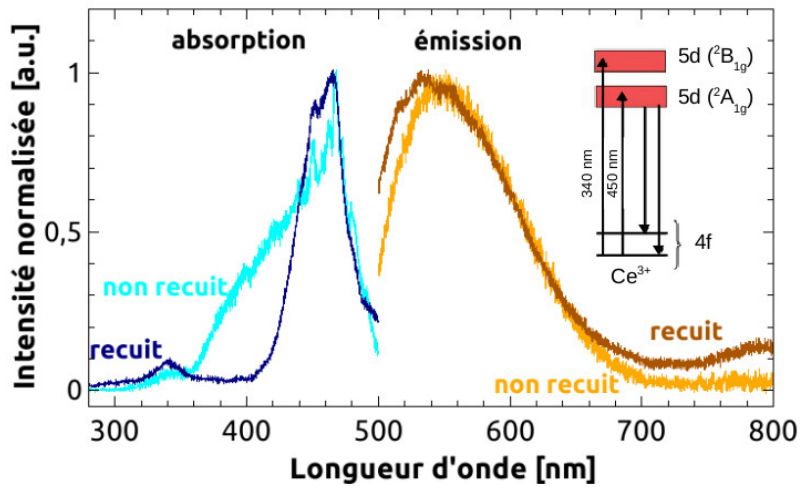


Figure 4.8: Spectres d'absorption ($\lambda_{em}= 450$ nm) et d'émission ($\lambda_{ex}= 450$ nm) d'une solution colloïdale de particules de YAG:Ce³⁺ avant et après recuit protégé. Insert : Diagramme d'énergie des ions Ce³⁺ schématisant les transitions mises en jeu.

sont définies comme le rapport entre l'intensité de la lumière émise et l'intensité de lumière absorbée par les particules. La valeur de rendement quantique des particules synthétisées par voie glycothermale non recuites est d'environ 40 %. Cette valeur est comprise dans l'intervalle des rendements mesurés lors de précédentes synthèses (allant de 25 à 55 %). Ces variations dépendent de la manière dont la solution est traitée après la synthèse tel que les conditions de séchage à l'étuve, mais aussi de la taille des particules synthétisées.

Enfin, des mesures mettant en évidence l'amélioration de la photostabilité ont été réalisées pendant la thèse d'Amélie. Le principe est d'illuminer fortement les particules et de mesurer l'intensité de luminescence émise au cours du temps. La mesure a été réalisée avec des particules non recuites (brutes) et des particules recuites. Au bout de 10 minutes, les particules brutes ont perdu 80 % de leur luminescence alors que les particules recuites n'en ont perdu que 40 % (Fig. 4.9). Ces expériences prouvent la nette amélioration de la photostabilité des particules recuites.

Cet effet est confirmé par nos observations sous le microscope optique de l'Institut Néel. Nous constatons que les particules recuites de 300 et de 60 nm de diamètre sont individuellement observables pendant plusieurs heures alors que les particules brutes de 300 nm deviennent indétectables au bout de quelques minutes et seulement quelques secondes pour celles de 60 nm.

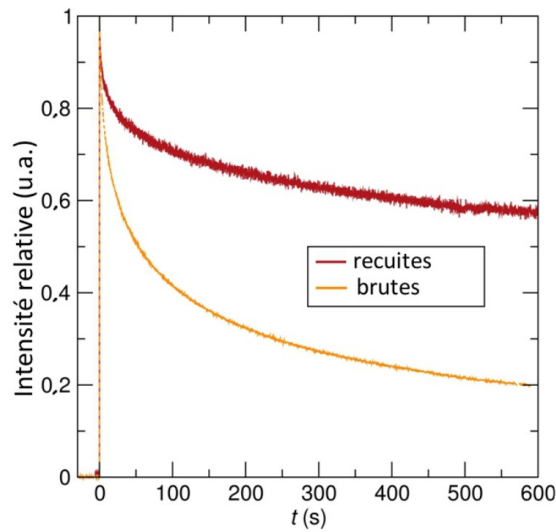


Figure 4.9: Photostabilité des nanoparticules de YAG:Ce^{3+} avant et après recuit excitées à 405 nm ($P = 50\text{W}/\text{cm}^2$). [96]

Nous avons synthétisé par voie glycothermale suivi par un recuit protégé des nanoparticules luminescentes de YAG:Ce^{3+} . La caractérisation de ces particules nous a permis de constater qu'elles sont parfaitement adaptées pour les expériences de piégeage. En effet, elles possèdent d'excellentes propriétés optiques, sont stables dans l'eau et ont une distribution en taille bien définie. Au final, nous disposons de deux solutions de particules de YAG:Ce^{3+} recuites quasi-sphériques de taille moyenne de 55 ± 40 nm et 280 ± 100 nm.

4.2 Piégeage des particules de YAG:Ce^{3+}

4.2.1 Particules de 300 nm

Dans un premier temps, nous avons piégé de manière stable et reproductible les particules de YAG:Ce^{3+} de plus grande taille, provenant du culot de la synthèse décrite précédemment. Nous les appellerons par la suite les particules "YAG 300".

Sur la Figure 4.10 présentant des images acquises avec notre microscope optique, nous avons piégé une puis deux particules de YAG 300. Sur ces images, nous utilisons simultanément le laser d'excitation émettant à 457 nm, le laser de piégeage à 808 nm, et la lumière blanche. Le laser d'excitation permet de visualiser les nanoparticules grâce à leur luminescence. Quant à la lumière blanche, elle est utilisée pour visualiser les pointes, nous permettant de connaître la distance entre celles-ci et d'appréhender l'endroit où la particule va se piéger.

Des particules individuelles peuvent être piégées pendant plusieurs heures. Il est également possible de piéger plusieurs particules simultanément. Dans ce cas, le temps de piégeage dure quelques minutes avant que les particules ne soient éjectées simultanément. Sur la Figure 4.10.b qui présente deux particules de YAG 300 piégées, nous remarquons que leurs intensités de luminescence sont différentes. Deux raisons peuvent l'expliquer : soit ces particules ont une taille différente, soit elles ne se trouvent pas exactement dans le même plan de l'image.

La particule piégée est très photostable puisqu'elle est détectable pendant plusieurs heures. Sa luminescence est bonne et nous pouvons donc utiliser un temps d'exposition de caméra assez court. Par conséquent, nous enregistrons des vidéos à haute fréquence de lecture allant de 100 à 200 fps. Des distances inter-pointes typiques pour le piège de ces particules sont de 5 μm pour des puissances optiques d'une dizaine de milliwatts.

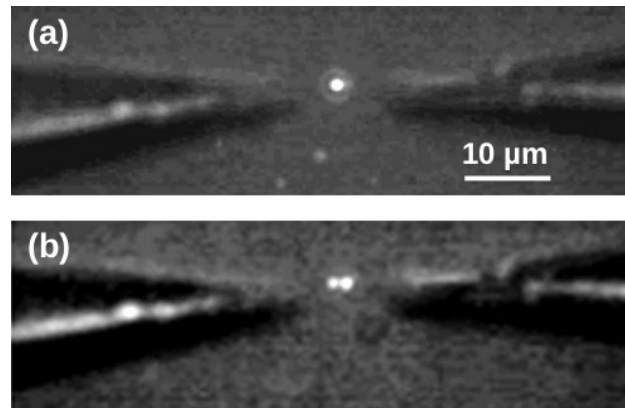


Figure 4.10: Images par microscopie optique d'une (a) et de deux (b) particules luminescentes de YAG:Ce³⁺ piégées, d'environ 300 nm de diamètre.

À partir des tracés en position de la particule piégée, l'efficacité de piégeage est une nouvelle fois calculée en utilisant les méthodes décrites dans la partie 2.3. La Figure 4.11 présente les distributions statistiques de la position d'une particule piégée de YAG 300, dans les directions axiale et transverse. La distance entre les pointes est de 5 μm et la puissance optique de 6 mW. Suivant la direction transverse, nous retrouvons un comportement harmonique avec une distribution de forme Gaussienne. En revanche, dans la direction axiale des pointes, deux maxima sont présents et l'histogramme peut être ajusté avec une fonction Gaussienne double.

Concrètement, ces pics correspondent à deux positions métastables de piégeage. Elles sont distantes d'environ 430 nm, soit du même ordre de grandeur que la demi-longueur d'onde du laser dans l'eau (304 nm). Cela peut suggérer que la particule peut être piégée au niveau de deux franges d'interférences provenant des ondes

contra-propagatives. L'observation de cet effet implique que la particule piégée ait une taille sub-longueur d'onde. En effet, les microparticules recouvrent plusieurs franges d'interférences et il n'est donc pas possible de les résoudre (voir insert de la Figure 4.11). L'écart entre la mesure et la distance entre deux franges est cependant trop important pour être compris dans l'erreur expérimentale. Nous avons donc effectué des mesures complémentaires dans le but de comprendre ce phénomène. Elles seront détaillées dans la suite de cette partie.

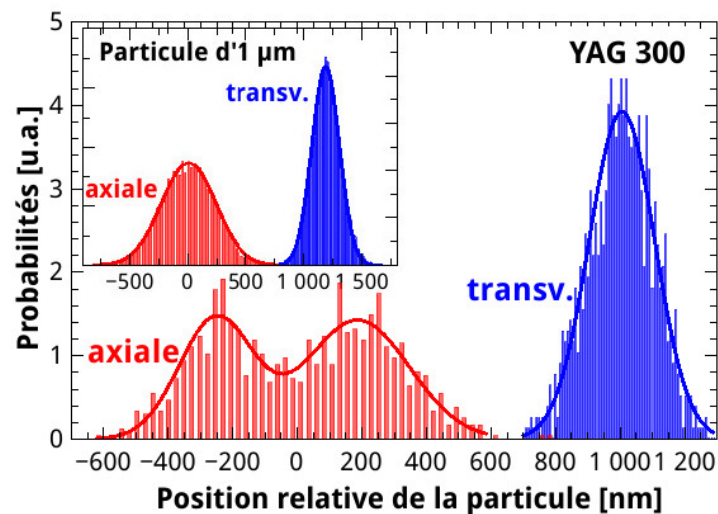


Figure 4.11: Distribution statistique de la position d'une particule de YAG 300 dans la direction axiale (rouge) et transverse (bleu). Les courbes sont des ajustements Gaussiens. Insert : Distribution statistique d'une particule de polystyrène d'1 μm .

Direction transverse : comportement harmonique

Dans la direction transverse, nous avons vu que le potentiel était de forme harmonique. Les raideurs optiques mises en jeu peuvent donc être mesurées. Nous étudions l'effet de la distance d entre les pointes sur la raideur de piégeage. Celle-ci est variée de 6 à 2 μm . En-dessous de 2 μm , il y a de trop grandes chances que la particule se colle à l'une des pointes avec les forces d'adhésion. Nous utilisons une puissance optique importante de 47 mW afin d'obtenir un piège très stable. Lors de ces mesures, le temps d'intégration de la caméra est de 10 ms, soit une fréquence de lecture de 100 fps.

Les Figures 4.12.a-b présentent les distributions statistiques et les spectres fréquentiels des oscillations en position d'une particule de YAG 300 piégée, pour plusieurs distances inter-pointe. Les distributions sont très bien ajustées avec des fonctions Gaussiennes. Pour l'étude fréquentielle, nous remarquons que plus la distance est faible, plus il est

difficile d'ajuster les données expérimentales avec une fonction Lorentzienne. Nous l'avons déjà observé avec les microparticules (partie 3.1.2) et nous y reviendrons par la suite.

Le signal retour U_R est également mesuré et analysé en fréquence (Fig. 4.12.c). Dans ce cas, la fréquence de lecture est de 5 kHz. Les ajustements Lorentziens sont très satisfaisants pour toutes les distances. Cependant, il est difficile de distinguer les contributions des directions axiale et transverse des oscillations de la particule, comme observé avec les microparticules (Fig. 3.9.d). La courbure à très haute fréquence est attribuée au bruit de la mesure.

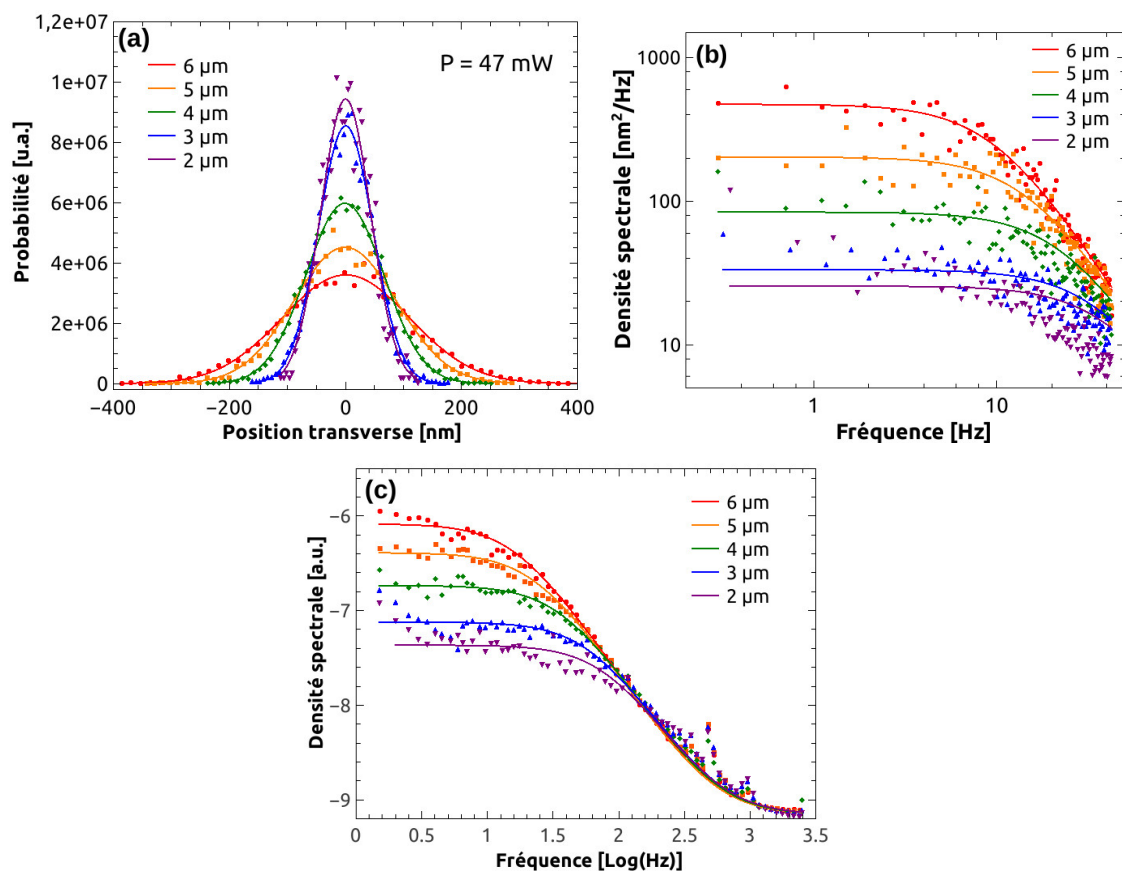


Figure 4.12: (a) Distribution statistique et (b) analyse fréquentielle de la position d'une particule de YAG 300 dans la direction transverse. (c) Spectre fréquentiel du signal retour U_R . Les mesures sont effectuées avec différentes distances.

Les raideurs de piégeage déterminées à partir de ces trois méthodes sont tracées en fonction de la distance d sur la Figure 4.13. Nous remarquons que de manière générale, l'évolution des raideurs peut toujours être approximée en $1/d^2$. Les raideurs

obtenues à partir de la méthode de Boltzmann dans la direction transverse et de l'analyse fréquentielle de U_R sont comparables. Cela signifie que le spectre fréquentiel de U_R est dominé par la contribution transverse des oscillations de la particule et la contribution axiale à basse fréquence ne peut pas être résolue.

Concernant l'étude fréquentielle à partir de la position de la particule (courbe bleue), la comparaison est assez bonne pour des distances de 5 - 6 μm mais les raideurs divergent pour les plus petite distances. Dans ce cas, la fréquence de lecture de la caméra est trop limitée. La fréquence de coupure de la particule passe de 20 Hz pour une distance de 6 μm à 95 Hz pour une distance de 2 μm . Elle devient donc plus importante que la fréquence de coupure de la caméra qui est de 50 Hz pour ces mesures. Cela explique également pourquoi les ajustements des spectres fréquentiels de la Figure 4.12.b ne sont plus corrects pour des petites distances.

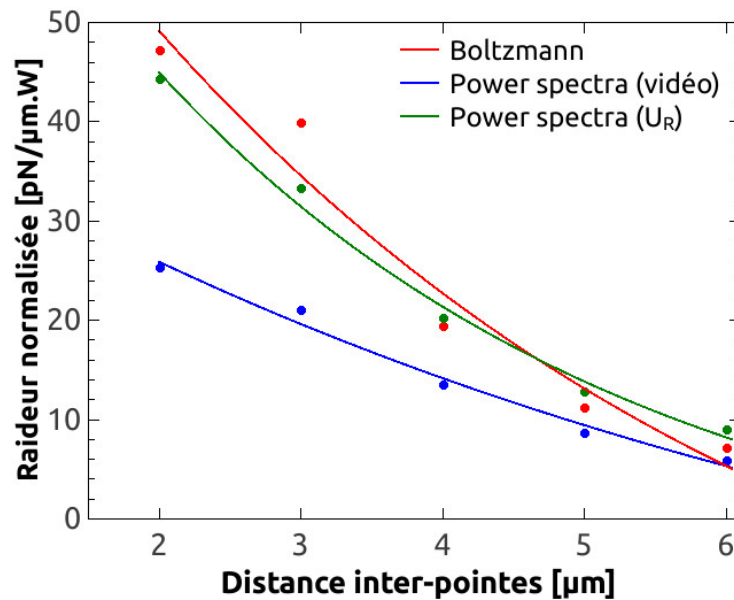


Figure 4.13: Raideur de piégeage d'une particule de YAG 300 calculée suivant les trois méthodes, dans la direction transverse en fonction de la distance. Les courbes sont des guides pour les yeux.

Pour une distance de 3 μm , nous calculons une raideur normalisée en puissance d'environ $\tilde{\kappa}_{300} = 35 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$ dans la direction transverse. Il est intéressant de comparer cette valeur avec celle mesurée pour des microparticules. La raideur de piégeage des particules de YAG de 300 nm est environ 12 fois plus faible que celle des particules d'1 μm ($\tilde{\kappa}_{1000} \approx 415 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$). Pour faire ce genre de comparaison, il faut évidemment utiliser les mêmes conditions expérimentales, telles que la distance entre les pointes.

Même si la taille des particules étudiées est normalement trop grande pour utiliser correctement l'approximation dipolaire décrite partie **1.1.2** (la limite étant ~ 200 nm de diamètre), nous pouvons tout de même nous en aider pour vérifier qualitativement nos mesures. Avec cette approximation, nous savons que la force de gradient est proportionnelle à la polarisabilité de la particule piégée. Pour cette comparaison, en prenant en compte le volume et la permittivité relative des particules ($\epsilon_{r,PS} = 2,50$ pour le polystyrène et $\epsilon_{r,YAG} = 3,32$ pour le YAG), les forces optiques appliquées aux particules de YAG 300 devraient diminuer de ~ 14 fois. Nous trouvons le même ordre de grandeur ce qui valide nos résultats.

Direction axiale : franges d'interférences

Dans la direction axiale, nous avons constaté un comportement différent de la particule qui est piégée de manière métastable sur plusieurs positions. Nous avons suggéré qu'elle pouvait se piéger sur différentes franges d'interférences générées par les deux faisceaux contra-propagatifs. Pour vérifier cette hypothèse, nous réalisons une série de mesures en modifiant la polarisation relative des faisceaux.

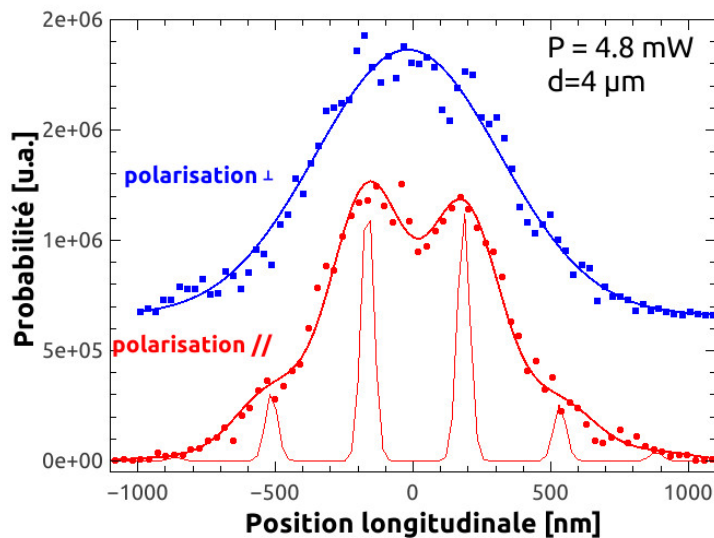


Figure 4.14: Distribution statistique de la position d'une particule de YAG 300 dans la direction axiale pour des polarisations orthogonale (bleu) et parallèle (rouge). Les lignes en gras sont les ajustements Gaussiens et la ligne fine est un guide pour aider à visualiser la position des pics.

Une particule de YAG 300 est piégée avec une distance inter-pointe de $4 \mu\text{m}$ et une puissance de $4,8 \text{ mW}$. Une série de vidéos est enregistrée pour différents angles de polarisation dans une des fibres (de 0 à 180°). En fonction de la polarisation

relative des deux ondes, nous observons plusieurs pics dans la distribution statistique (Fig. 4.14). Celle-ci est alors ajustée avec une somme de fonctions Gaussiennes espacées de 350 nm. Cette distance est du même ordre de grandeur que $\lambda/2n$. Lorsque nous tournons la polarisation relative d'un faisceau, les franges d'interférences s'annihilent et les pics dans la distribution disparaissent progressivement.

Pour expliquer ce phénomène, prenons deux ondes contra-propagatives qui sont polarisées linéairement et se propagent dans la direction x . Leurs champs électriques s'écrivent alors : $E_1 = E_0 \cos(kx - \omega t)$ et $E_2 = E_0 \cos(-kx - \omega t)$, en considérant qu'ils ont la même amplitude E_0 .

Lorsque les deux ondes se croisent, le champ électrique total vaut $E_{tot} = E_1 + E_2$. L'intensité du champ $I_{tot} = |E_{tot}|^2$ s'écrit alors :

$$I_{tot} = E_0^2(1 + \cos(\delta)) \quad (4.3)$$

avec $\delta = 2kx + \epsilon$, k étant le vecteur d'onde et ϵ la différence de phase entre les deux ondes. L'équation 4.3 devient alors :

$$I_{tot} = 2E_0^2 \cos^2\left(\frac{2\pi}{\lambda}x + \frac{\epsilon}{2}\right) \quad (4.4)$$

Si les ondes sont polarisées perpendiculairement, les ondes n'interfèrent pas et par conséquent il n'y a pas de franges d'interférences. Au contraire, lorsqu'elles sont polarisées parallèlement, elles interfèrent au maximum et donnent lieu à des franges. C'est bien ce que nous retrouvons expérimentalement et ces mesures en polarisation mettent en évidence que les particules de YAG 300 peuvent être piégées sur différentes franges d'interférences.

Pour résumer, nous avons piégé de manière stable et reproductible des particules de YAG:Ce³⁺ de 300 nm de diamètre. Le potentiel de piégeage est harmonique dans la direction transverse, nous permettant de définir la raideur optique du piège. Nous avons mesuré une raideur normalisée de 35 pN $\mu\text{m}^{-1} \text{W}^{-1}$, soit une valeur environ 12 fois plus faible que celle d'une particule d'1 μm en polystyrène. L'exploitation du signal retour U_R devient important puisque sa fréquence de lecture est beaucoup plus élevée que celle de la caméra. Ainsi elle reste largement supérieure à la fréquence de coupure des particules et permet de caractériser précisément le piège et ce même avec des raideurs importantes. Enfin, nous avons observé l'apparition de plusieurs pièges métastables dans la direction axiale dues aux franges d'interférences provenant des deux ondes contra-propagatives.

4.2.2 Particules de 60 nm

Par la suite, nous avons étudié les particules de YAG:Ce³⁺ provenant du surnageant de la synthèse glycothermale. Ces particules qui mesurent en moyenne 55 nm de diamètre sont appelées par la suite "YAG 60". Elles sont près de 125 fois plus petites en volume comparé à celles de 300 nm. Par conséquent, elles ont une très faible intensité de luminescence puisque le nombre d'ions Ce³⁺ dopants est proportionnel au volume de la particule. Leur visualisation devient donc assez délicate.

En utilisant le maximum de puissance du laser d'excitation ($P_{ex} \sim 100$ mW) et en augmentant le temps d'exposition de la caméra CMOS à 50 ms, nous avons tout de même pu visualiser la luminescence de ces particules. En contrepartie, la fréquence maximale de lecture de la caméra est de seulement 20 fps, ce qui est une sérieuse limitation pour la caractérisation du piège.

Le piégeage stable des particules de YAG 60 est réalisé avec une puissance optique élevée de 46 mW et une distance entre les pointes allant de 2 à 6 μm . La luminescence d'une particule piégée est imagée dans l'insert de la Figure 4.15.a.

Les distributions statistiques et l'analyse fréquentielle des oscillations en position de la particule à partir des vidéos ne sont pas assez précises du fait de la trop faible fréquence de lecture de la caméra. C'est pour cette raison que l'étude du signal retour U_R qui est mesuré à haute fréquence (5 kHz), devient primordiale.

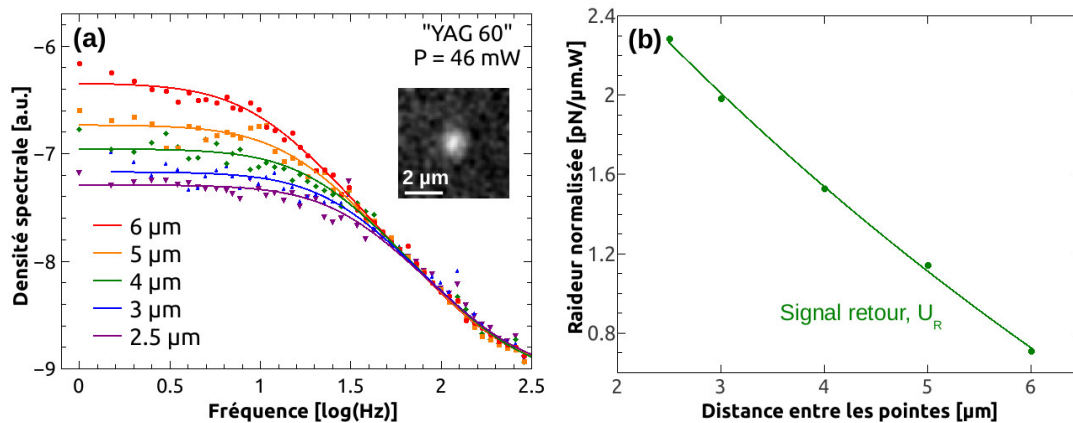


Figure 4.15: (a) Spectres fréquentiels à partir de U_R et (b) raideur de piège d'une particule de YAG 60. Insert : Image de la luminescence d'une particule de YAG 60.

Les spectres fréquentiels à partir de U_R sont tracés sur la Figure 4.15.a pour plusieurs distances. La fréquence de coupure et la raideur du piège sont une nouvelle fois calculées en ajustant les données expérimentales avec une fonction Lorentzienne. Les spectres sont de nouveau dominés par la contribution transverse des oscillations de

la particule, la contribution axiale ne pouvant pas être résolue. La raideur est tracée en fonction de d sur la Figure 4.15.b.

Pour une distance de 3 μm , nous calculons une raideur normalisée en puissance de $\tilde{\kappa}_{60} = 2 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$. Cette valeur est environ 17 fois plus faible que celle obtenue avec les particules de 300 nm dans la direction transverse. En utilisant une nouvelle fois l'approximation dipolaire et en comparant la polarisabilité des particules, nous nous attendrions à ce que les forces appliquées soient 125 fois plus faible.

Deux raisons pourraient expliquer cette importante différence :

- Nous ne connaissons pas exactement la taille des particules de YAG:Ce³⁺ piégées. Même si la distribution en taille de nos particules est bonne, il y a tout de même une probabilité de piéger une particule allant de 20 à 100 nm (Fig 4.7.b). Par exemple dans le cas d'une particule de 100 nm, les forces optiques ne seraient plus que 27 fois plus faibles par rapport aux particules de YAG de 300 nm.
- Avec de si petites particules, nous ne sommes pas toujours certains de piéger une particule individuelle. Nous ne pouvons pas déterminer la taille et le nombre de particules en se basant sur leur intensité de luminescence puisque celle-ci fluctue au cours du temps. Ces fluctuations sont engendrées par l'agitation de la particule piégée qui n'est donc pas toujours exactement dans le plan focal de l'objectif du microscope. De plus, sa photostabilité n'est pas parfaite. L'intensité de luminescence nous donne tout de même des indices et nous permet d'éviter de piéger les gros agrégats traduits par une émission très intense comparée aux autres.

Nous verrons dans la prochaine partie (4.3) qu'il est toutefois possible de déterminer la taille des particules piégées à l'aide de la raideur mesurée.

Nous avons également utilisé les tracés en position de la particule de YAG 60 piégée afin de visualiser la forme du piège. La Figure 4.16 présente la trajectoire et les distributions statistiques de la position de la particule dans les deux directions. Les pointes sont éloignées ici de 2,5 μm . Nous constatons que la distribution est de forme Gaussienne dans la direction transverse (Fig 4.16.b). Par contre dans la direction axiale, il y a la présence de trois pics distants d'environ 900 nm, correspondant à trois positions métastables de piégeage. La distance est trop grande pour qu'il s'agisse de franges d'interférences, comme observé précédemment. De plus le mouvement Brownien de ces petites particules est trop important et inhibe l'observation des franges.

La particule peut donc être piégée à trois endroits distincts. Elle peut se placer au centre comme nous en avons l'habitude, c'est à dire à l'endroit où les forces de diffusions F_{diff} des deux ondes se compensent. La nouveauté est que la particule

peut également être attirée et piégée très proche des pointes (Fig 4.16.c). Dans ce cas, la particule est piégée un court instant grâce à la force de gradient F_{grad} qui surpasse la force de diffusion dans cette zone.

Cet effet n'est pas observé avec les particules de plus grande taille. Comme nous l'avons vu précédemment, dans l'approximation dipolaire $F_{diff} \propto a^6$ (avec a le rayon de la particule, éq. 1.11), alors que $F_{grad} \propto a^3$ (éq. 1.10). Par conséquent, plus la particule est petite, plus F_{grad} prend de l'ampleur par rapport à F_{diff} . Les petites particules sont donc plus facilement attirées par les pointes.

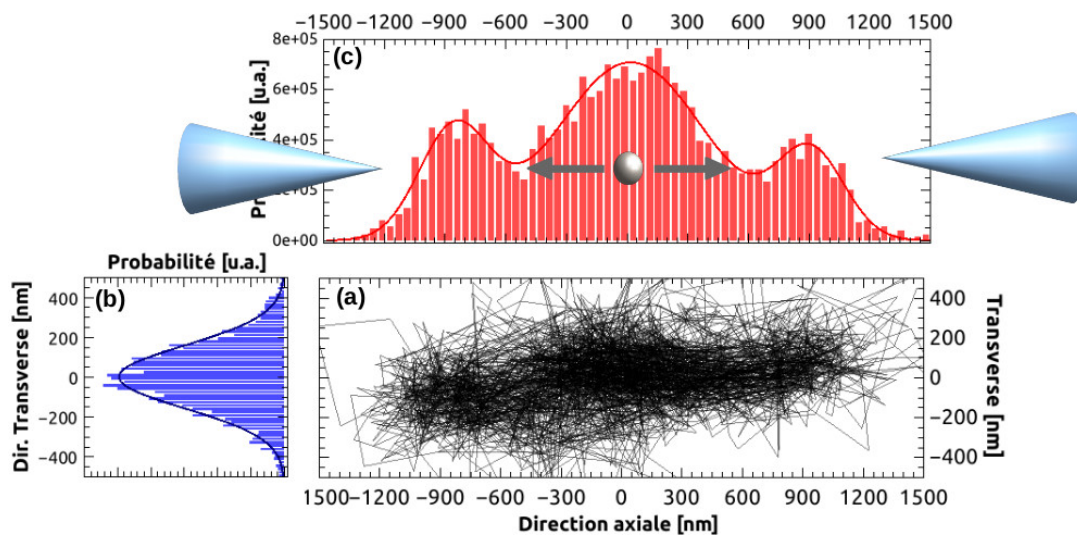


Figure 4.16: Trajectoire (a) et distribution statistique de la position d'une particule piégée de YAG de 60 nm dans la direction transverse (b) et axiale (c). La distance entre les pointes est de 2,5 μm .

Nous avons piégé optiquement de manière stable des nanoparticules de YAG:Ce³⁺ d'environ 60 nm de diamètre, prouvant l'efficacité de notre pince optique. Nous avons mesuré la raideur de piégeage en réalisant une étude fréquentielle du signal retour U_R , qui devient primordial pour l'étude d'aussi petites particules. Une raideur de 2 pN $\mu\text{m}^{-1} \text{W}^{-1}$ est obtenue avec une distance de 3 μm entre les pointes. Nous avons également observé trois positions métastables de piégeage dans la direction axiale, signifiant que la particule peut aussi être attirée par les forces de gradients des deux faisceaux.

4.3 Influence du volume sur les forces optiques

Nous avons étudié expérimentalement l'influence du volume des particules piégées sur les forces optiques appliquées. Pour cela, nous avons caractérisé le piégeage de particules sphériques luminescentes en polystyrène de taille sub-micrométrique¹. L'intérêt de ces particules commerciales est leur taille très bien définie. L'inconvénient majeur est qu'elles ne sont pas photostables.

Nous avons à notre disposition des particules de quatre diamètres différents : 500, 390, 200 et 100 nm. Un laser émettant à 457 nm est utilisé pour exciter les particules qui luminescent dans le vert. Notons que leur émission est uniquement utilisée pour la visualisation.

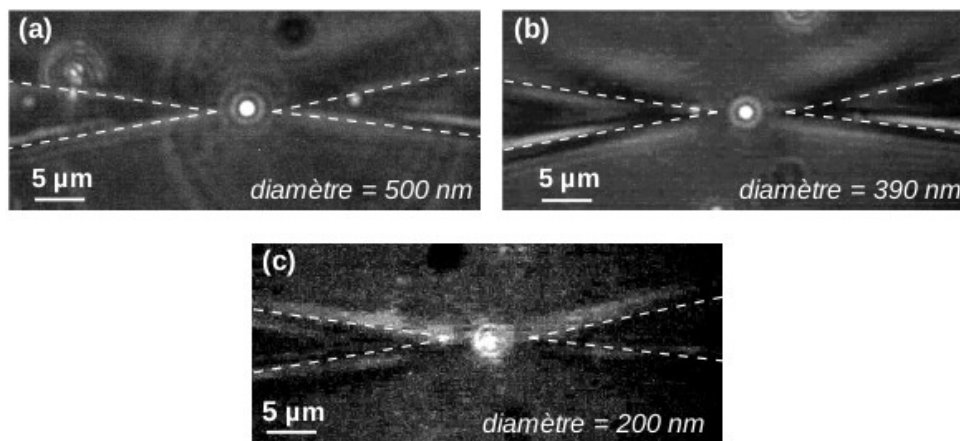


Figure 4.17: Images par microscopie optique de particules luminescentes en polystyrène piégées de 500 (a), 390 (b) et 200 nm de diamètre (c). Les lignes en pointillés sont ajoutées pour mieux visualiser les points.

La Figure 4.17 présente des images de trois particules piégées de 500, 390 et 200 nm de diamètre. L'intensité de luminescence est très bonne pour les particules de 500 et de 390 nm et nous pouvons les observer pendant une dizaine de minutes avant qu'elles ne s'éteignent par photoblanchiment. Il est cependant délicat d'étudier les particules plus petites puisqu'elles s'éteignent en moins d'une minute pour les particules de 200 nm et en quelques secondes seulement pour celles de 100 nm. La quantité de molécules luminescentes étant dépendante du volume de la particule, plus la particule est petite, plus son émission est faible et par conséquent, plus il faut augmenter la puissance du laser d'excitation pour pouvoir la détecter.

Les trajectoires de ces trois particules piégées sont tracées sur la Figure 4.18. Les

1. Fluoro-max, Thermo Fisher

distributions statistiques sont réalisées et les raideurs optiques sont mesurées en utilisant la statistique de Boltzmann, décrite dans la partie **2.3.2**. Pour cette expérience, les pointes sont positionnées à une distance standard de $5\ \mu\text{m}$. Nous utilisons une puissance laser élevée de $46\ \text{mW}$, afin de piéger sans difficulté les particules de toutes les tailles.

Tout d'abord, nous remarquons que les trois particules bougent davantage dans la direction axiale que dans la direction transverse. Ce résultat est déjà observé avec les microparticules et est dû à la géométrie de notre pince. Ensuite, plus la particule piégée est petite et plus son mouvement est important dans le piège. Cela se traduit par un élargissement dans les distributions statistiques dans les directions axiale et transverse (Figs. 4.18.b-c). Ce résultat est en accord avec l'approximation dipolaire où les forces optiques sont proportionnelles à la polarisabilité de la particule piégée. Nous observons que l'élargissement est plus prononcé dans la direction axiale. Dans cette direction, nous y associons la force de diffusion qui est proportionnelle à a^6 . Quant à la force de gradient qui domine dans la direction transverse, elle est seulement proportionnelle à a^3 . Par conséquent, la force de diffusion décroît beaucoup plus rapidement que la force de gradient lorsque la taille de la particule diminue, ce qui explique que l'effet soit plus prononcé dans la direction axiale.

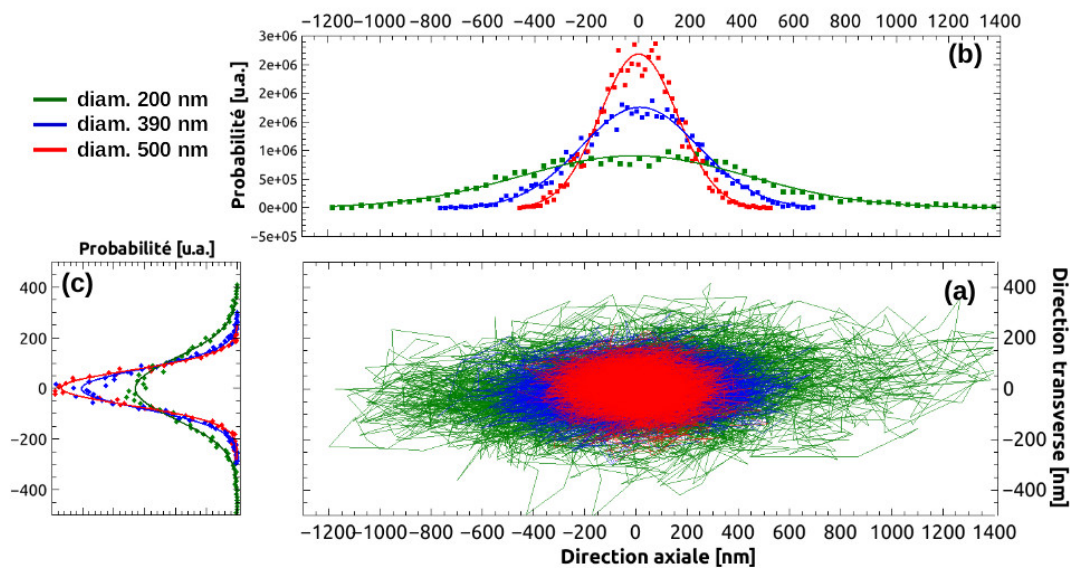


Figure 4.18: Trajectoire (a) et distribution statistique en position de trois sphères piégées de 500, 390 et 200 nm de diamètre dans la direction axiale (b) et transverse (c). La distance entre les pointes est de $5\ \mu\text{m}$ et la puissance optique de $46\ \text{mW}$.

En appliquant des ajustements Gaussiens aux distributions statistiques, les raideurs optiques κ des trois particules sont déterminées dans les deux directions. La Figure 4.19 présente κ en fonction du volume de la particule piégée. Même si il est difficile de tirer des conclusions avec seulement trois points, nous trouvons un comportement plutôt linéaire de la raideur par rapport au volume (a^3) dans la direction transverse. Dans la direction axiale, nous pouvons considérer que κ évolue de manière parabolique (a^6). Ces résultats sont bien en accord avec l'approximation dipolaire.

Cette méthode peut être utilisée pour calibrer notre pince. En effet, il est possible de déterminer le volume d'une particule de taille inconnue en calculant la raideur du piège par la statistique de Boltzmann, qui ne nécessite pas de connaître les dimensions de l'objet piégé.

Par exemple, nous avons mesuré précédemment les raideurs avec les particules de YAG:Ce³⁺ dans la direction transverse avec une distance inter-points de 5 μm . Les raideurs sont : 14 $\text{pN}\mu\text{m}^{-1}\text{W}^{-1}$ pour la particule YAG 300 (Fig. 4.13) et 1,1 $\text{pN}\mu\text{m}^{-1}\text{W}^{-1}$ pour le YAG 60 (Fig. 4.15). En reportant ces valeurs sur la Figure 4.19 et en pensant à prendre en compte leur permittivité, nous trouvons un diamètre de 235 nm pour la particule de YAG 300 et de 100 nm pour celle de YAG 60. Même si la courbe de calibration mériterait d'avantage de points pour avoir des mesures plus précises, les valeurs obtenues sont tout de même bien comprises dans les distributions en taille de ces deux particules et permettent de valider cette méthode.

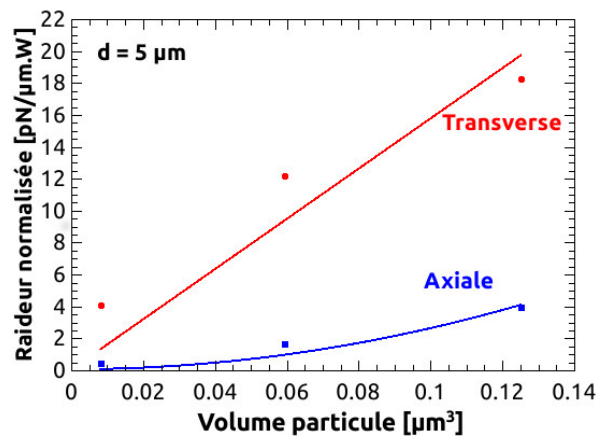


Figure 4.19: Raideur optique normalisée en puissance, en fonction du volume de la particule de polystyrène ($n = 1,58$) piégée dans la direction axiale et transverse.

4.4 Simulations

Des simulations numériques ont été réalisées par nos partenaires Francisco J. Valdivia-Valero et Gérard Colas des Francs [100]. Ils utilisent la méthode des éléments finis avec le logiciel de modélisation Comsol¹. Le but est d'avoir une meilleure compréhension sur les mécanismes physiques de notre pince optique, de calculer les forces optiques mises en jeu avec les conditions expérimentales utilisées, et de comparer les résultats obtenus expérimentalement.

Les simulations ont été réalisées en utilisant les deux approches énoncées dans le chapitre 1 : l'approximation dipolaire est exploitée pour permettre de comprendre qualitativement le mécanisme de piégeage, le tenseur de contraintes de Maxwell est utilisé pour calculer les forces optiques exactes agissant sur la particule piégée.

4.4.1 Modèle avec une fibre

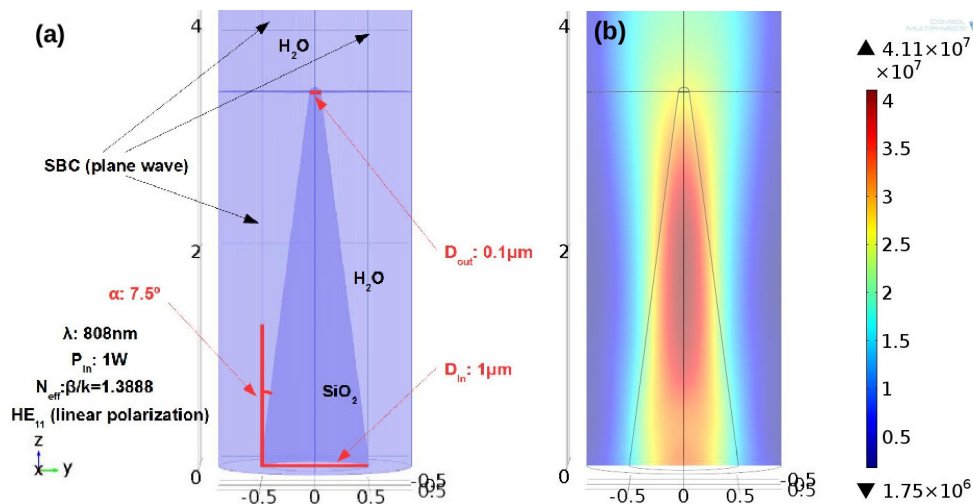


Figure 4.20: (a) Schéma de calcul d'une pointe en silice immergée dans l'eau. (b) Champ électrique normalisé (V/m) calculé le long d'une pointe optique [100].

Dans le but de comprendre l'origine physique du piégeage optique, nous discutons en premier lieu des forces optiques générées par une seule pointe. La géométrie du modèle utilisé se rapproche le plus possible des conditions expérimentales et est décrit sur la Figure 4.20.a. Il consiste en une pointe en silice avec un angle total de 15°. Le diamètre à l'entrée est de 1 μm et celui en sortie est de 100 nm. Le système est

1. COMSOL Multiphysics®

immergé dans l'eau et le port d'entrée est excité avec un champ électrique polarisé linéairement avec une puissance d'1 W. Le mode de propagation jusqu'à la sortie de la pointe est visible sur la Figure 4.20.b. Nous observons que le champ électrique est toujours polarisé linéairement à la sortie et présente un profil d'intensité circulaire Gaussien.

Approximation dipolaire

La force optique qui s'applique sur une particule selon l'approximation dipolaire est détaillée dans la partie 1.1.2.

L'énergie potentielle et les forces optiques qui agissent sur une particule de YAG de 300 nm de diamètre sont représentées sur la Figure 4.21. Dans la direction axiale, nous calculons une force optique totale de 175 pN, pour une particule ayant son centre placé à 170 nm de la pointe. La force de diffusion calculée est environ 13 fois supérieure à la force de gradient, ce qui empêche le piégeage de la particule dans le cas où il n'y a qu'une seule pointe.

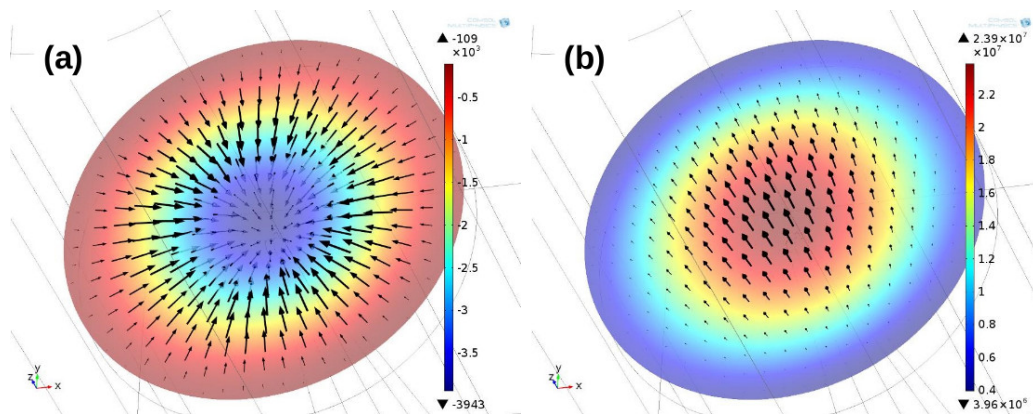


Figure 4.21: (a) Énergie potentielle $U_{pot}/k_B T$ ($T = 25^\circ\text{C}$) et force de gradient (flèches) appliquée sur une particule de YAG de 300 nm de diamètre. (b) Intensité du champ électrique (échelle de couleur) et force de diffusion (flèches).

Tenseur de Maxwell

La force exacte agissant sur la particule de 300 nm avec une seule pointe a été calculée à l'aide du tenseur de contraintes de Maxwell (voir éqs.1.2 et 1.3). Il faut noter qu'avec cette méthode, seule la force totale peut être déterminée, sans distinction entre force de diffusion et force de gradient.

La force totale calculée est 45 pN dans la direction axiale pour une particule toujours située à 170 nm de la pointe. Cette valeur est presque 4 fois plus faible que la

force calculée avec l'approximation dipolaire (175 pN). L'approximation dipolaire surestime donc la force totale ce qui confirme que le tenseur de Maxwell doit-être utilisé pour décrire quantitativement le piégeage de particules de cette dimension. Cependant, l'approximation dipolaire reste très intéressante pour comprendre les mécanismes de piégeage. Les simulations numériques ont montré que l'approximation dipolaire est réellement valable pour des particules de diamètre inférieure à 200 nm.

4.4.2 Modèle avec deux fibres

La pince optique complète avec deux pointes en face à face est également simulée. La distance entre celles-ci est fixée à $2,5 \mu\text{m}$ et la particule de YAG est de 300 nm de diamètre. Le champ électrique présente des franges d'interférences que l'on retrouve également sur la carte d'énergie potentielle (Figs. 4.22.a-b). Deux puits sont séparés de $\lambda/2n_m = 304 \text{ nm}$. L'énergie potentielle présente un comportement harmonique dans l'axe transverse au centre des deux pointes (Fig. 4.22.c).

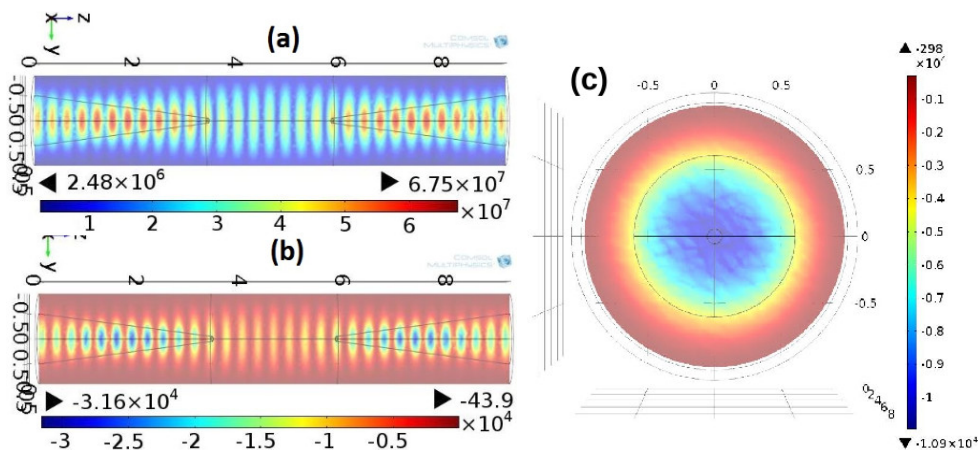


Figure 4.22: Simulation de deux pointes placées en face à face et séparées de $2,5 \mu\text{m}$. Carte du champ électrique (a) et énergie potentielle dans la direction axiale (b) et transverse (c) pour une particule de YAG 300 nm .

Nous calculons une raideur transverse de $70 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$. Cette valeur est une moyenne des valeurs calculées dans les directions parallèle et perpendiculaire à la polarisation du champ électrique. Dans la direction axiale, la force de diffusion s'annule au centre du piège pour des raisons de symétrie. La raideur calculée est presque deux fois supérieure à celle mesurée expérimentalement à une distance de $2,5 \mu\text{m}$ ($40 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$, Fig. 4.13). Nous expliquons cette différence par le fait que l'approximation dipolaire appliquée surestime les forces optiques pour des particules de diamètre $> 200 \text{ nm}$, comme nous l'avons vu précédemment.

La distance calculée entre deux franges est comparable à celle mesurée expérimentalement sur la Figure 4.14 (350 nm). Nous considérons que les 15 % de différence sont dus aux erreurs expérimentales.

Enfin, la raideur de piégeage d'une particule de YAG de 60 nm de diamètre est également calculée dans l'approximation dipolaire. Celle-ci est de $1,6 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$ dans la direction transverse avec une distance inter-fibres de $2,5 \mu\text{m}$. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celle mesurée expérimentalement ($2,3 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$, Fig. 4.15). La différence peut être attribuée au diamètre de la particule piégée expérimentalement qui est plus grand que 60 nm.

Nous n'avons pas pu effectuer de calculs exacts à l'aide du tenseur de Maxwell dans la configuration avec deux pointes séparées de $2,5 \mu\text{m}$ pour des raisons de limitations numériques.

4.5 Nanobâtonnets de $\text{NaYF}_4:\text{Er}/\text{Yb}/\text{Gd}$

Les expériences présentées jusqu'ici ont été réalisées avec des particules sphériques. Il est également intéressant d'étudier des particules asphériques et de regarder leur comportement au sein du piège. Dans cet objectif, nous avons étudié des nanoparticules de fluorures NaYF_4 dopés avec de l'ytterbium, de l'erbium et du gadolinium ($\text{NaYF}_4:\text{Er}/\text{Yb}/\text{Gd}$).

Nous avons choisi ce système pour les raisons suivantes :

- Il a d'excellentes propriétés de luminescence de type up-conversion.
- Le rapport d'aspect (longueur / largeur) des bâtonnets est bien contrôlé et peut être modifié.
- Les bâtonnets sont stables dans l'eau après un traitement spécifique.
- Sa synthèse est bien maîtrisée.

Ces bâtonnets nous permettent également de réaliser des expériences de spectroscopie de luminescence sur particule individuelle piégée optiquement. C'est un aspect très intéressant puisque les propriétés spectroscopiques pourraient être différentes en fonction de l'orientation du bâtonnet au sein du piège.

4.5.1 Synthèse et caractérisation

Les bâtonnets sont synthétisés par voie hydrothermale. Le principe est similaire à la synthèse glycothermale utilisée pour l'élaboration des particules de $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$, mais cette fois le solvant est l'eau et non le butanediol. Les bâtonnets croissent sous autoclave à une température relativement basse ($200 \text{ }^\circ\text{C}$). Leur longueur peut être contrôlée en variant le taux de dopage en Gadolinium [101].

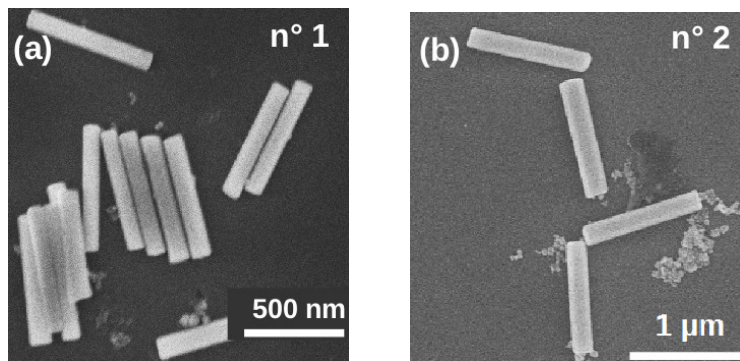


Figure 4.23: Images MEB de nanobâtonnets de NaYF₄ de 640 nm de long (a) et de 935 nm de long (b).

Nous avons à notre disposition deux échantillons de nanobâtonnets ayant des dimensions différentes : 640 nm et 935 nm de long pour respectivement 100 nm et 170 nm de large (Fig. 4.23).

Les particules de NaYF₄:Er/Yb/Gd émettent par up-conversion. Le mécanisme d'émission lié aux ions Er³⁺/Yb³⁺ est détaillé dans la thèse [102] et schématisé sur la Fig. 4.24.a.

L'ion ytterbium agit comme un sensibilisateur et permet l'absorption de photons à basse énergie (980 nm). Un premier photon est absorbé par Yb³⁺ qui passe de son état fondamental (²F_{7/2}) à son état excité (²F_{5/2}). À partir de ce moment là, soit Yb³⁺ se désexcite directement de façon radiative et émet un photon dans l'infrarouge, soit il transmet son énergie à l'ion erbium qui passe à l'état ⁴I_{11/2}. Dans ce cas, Er³⁺ peut réabsorber l'énergie transférée par Yb³⁺ ayant absorbé un nouveau photon et passe ainsi au niveau ⁴F_{7/2}. Il se désexcite alors par relaxation phononique vers les niveaux ²H_{11/2}, ⁴S_{3/2} et ⁴F_{9/2}. Enfin, à partir de ces trois niveaux, Er³⁺ se désexcite radiativement vers son niveau fondamental avec l'émission de photons à 515, 540 et 660 nm.

En excitant les bâtonnets à 980 nm, nous retrouvons bien trois raies principales, associées aux longueurs d'onde 525, 540 et 660 nm (Fig. 4.24.b). Une solution de bâtonnets est illuminée avec une source IR et présente une luminescence très intense dans le vert (insert Fig. 4.24.b).

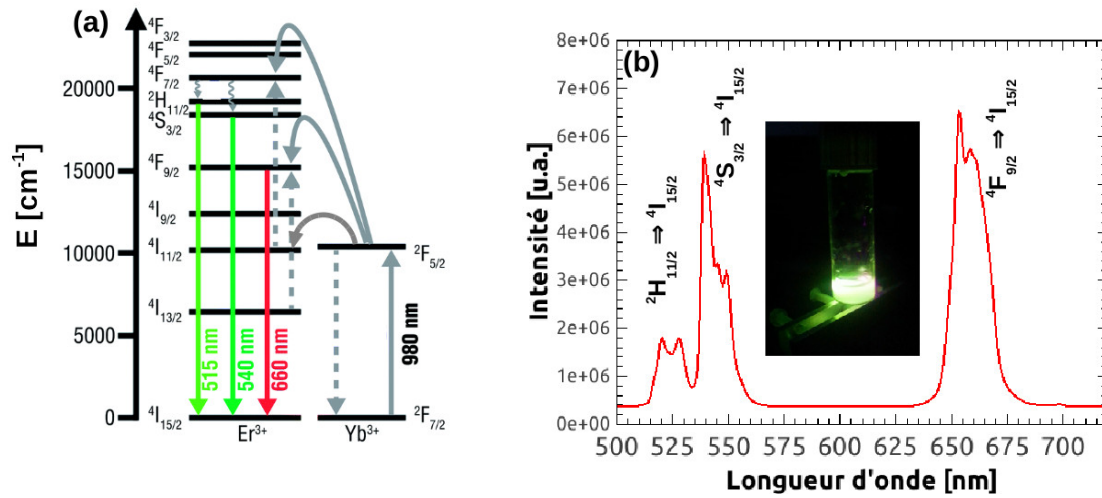


Figure 4.24: (a) Diagramme d'énergie des ions Er^{3+} et Yb^{3+} . (b) Spectre d'émission des nanobâtonnets de NaYF_4 , insert : cliché d'une solution de NaYF_4 sous une lumière IR [103].

4.5.2 Piégeage et spectroscopie de luminescence

Nous avons piégé optiquement des bâtonnets de 935 et 640 nm de long et nous avons réalisé de la spectroscopie de luminescence sur des particules individuelles. Le dispositif expérimental d'injection est légèrement modifié avec l'ajout du spectromètre (voir Fig 2.10). Un laser émettant à 980 nm est utilisé pour exciter les bâtonnets de $\text{NaYF}_4:\text{Er}/\text{Yb}/\text{Gd}$.

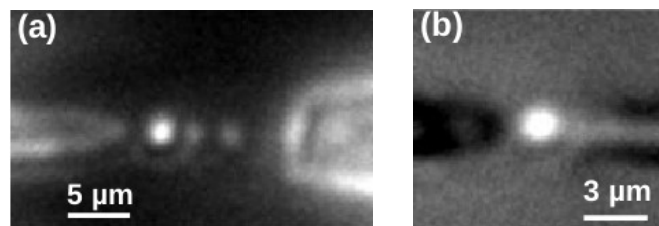


Figure 4.25: Image par microscopie optique de bâtonnets de NaYF_4 piégés de 935 nm (a) et 640 nm de long (b).

La Figure 4.25 présente des bâtonnets piégés et observés avec notre microscope optique. Nous observons de manière directe et sans excitation le piégeage de un à cinq bâtonnets de 935 nm de long (Fig. 4.25.a). Le microscope est ici utilisé en champ sombre. Les particules ont également été excitées à 980 nm pour visualiser

leur émission. La Figure 4.25.b présente la luminescence d'un bâtonnet de 640 nm piégé.

Les bâtonnets peuvent donc être observés avec ou sans excitation à 980 nm. Nous expliquerons la raison par la suite. Dans les deux cas, nous n'observons qu'un spot circulaire sans pouvoir distinguer le grand axe du petit axe. Il est donc impossible de connaître l'orientation du bâtonnet piégé de cette manière. Pour pouvoir discerner les deux axes, il faudrait utiliser des bâtonnets plus grands.

Nous avons réalisé de la spectroscopie de luminescence sur un bâtonnet piégé (celui présenté Fig. 4.25.b). Pour être certain que la forme du spectre provienne réellement de la particule piégée et non de particules collées sur les pointes ou d'une autre source lumineuse, nous avons enregistré un spectre avant et pendant le piégeage du bâtonnet (Fig. 4.26.). La différence est sans appel. Nous détectons une raie principale de manière très détaillée à 660 nm, correspondant à la transition ${}^4F_{9/2} \Rightarrow {}^4I_{15/2}$ des ions Er³⁺. Par contre les deux autres pics dans le vert à 525 et 550 nm ne sont plus du tout visibles.

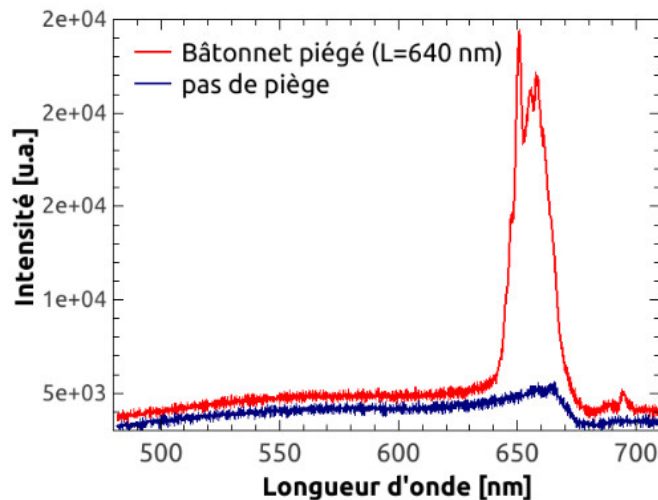


Figure 4.26: Spectre de luminescence d'un bâtonnet de NaYF₄ individuel piégé optiquement, d'une longueur de 640 nm.

Nous avons remarqué que nous pouvions observer la luminescence des bâtonnets seulement avec le laser de piégeage à 808 nm et sans l'excitation à 980 nm. En reprenant le diagramme d'énergie de Er³⁺ (Fig. 4.24.a), il y a la présence d'un niveau d'énergie ${}^4I_{9/2}$ qui correspond à une longueur d'onde de 810 nm, donc très proche du laser de piégeage. Er³⁺ pourrait alors absorber les photons à 808 nm et passer à l'état excité ${}^4I_{9/2}$. Il peut ensuite se désexciter de manière non radiative jusqu'aux niveaux du dessous ${}^4I_{11/2}$ puis ${}^4I_{13/2}$, réabsorber un nouveau photon et passer au

niveau $^4F_{9/2}$. Ainsi, il se désexcite radiativement jusqu'à son niveau fondamental en émettant à 660 nm. Sans le laser d'excitation à 980 nm, il est peu probable d'avoir une émission à plus haute énergie. Cela expliquerait la non présence des pics à 525 et 540 nm.

Il reste à comprendre pourquoi en utilisant le laser d'excitation à 980 nm, il n'y a pas non plus la présence des pics dans le vert. Lorsque nous utilisons les deux sources, la puissance surfacique du laser de piégeage à 808 nm doit largement surpasser celui d'excitation à 980 nm. En effet, le laser de piégeage qui est injecté dans les pointes, est très focalisé, parfaitement aligné sur la particule piégée et suffisamment puissant pour permettre le piégeage. Au contraire, le laser à 980 nm qui arrive par l'objectif, est réglé de telle sorte que la taille du spot corresponde à la taille de la fenêtre entière de visualisation. De plus il est moins intense que le laser de piégeage.

Finalement, les bâtonnets seraient donc principalement excités par le laser de piégeage à 808 nm, et émettent dans le rouge à 650 - 660 nm. Ces résultats étant obtenus en toute fin de ma thèse, ils ne sont pas encore parfaitement compris et demandent de nouvelles expérimentations.

Nous avons piégé une ou plusieurs particules anisotropes de $\text{NaYF}_4:\text{Er}/\text{Yb}/\text{Gd}$ de 935 et 640 nm de long. Leur émission de type up-conversion permet de les visualiser avec notre microscope. Nous avons également caractérisé leur luminescence en réalisant des mesures de spectroscopie sur particule individuelle en suspension et piégée optiquement. Les premiers résultats sont encourageants et ouvrent des perspectives très intéressantes. Par exemple nous pourrions étudier l'interaction entre plusieurs particules et observer les effets sur leurs propriétés de luminescence. Nous pourrions également exploiter l'anisotropie de ces particules puisque leurs propriétés spectroscopiques pourraient être différentes en fonction de leur orientation au sein du piège.

4.6 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons commencé par décrire les procédés de la synthèse glycothermale et les méthodes de caractérisation des nanoparticules de $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$. Elles possèdent des propriétés parfaitement adaptées pour les expériences de piégeage : d'excellentes propriétés optiques, une bonne stabilité dans l'eau et une distribution en taille bien définie. Nous disposons de deux solutions de particules de $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ recuites quasi-sphériques de 55 ± 40 nm et 280 ± 100 nm de diamètre.

Ensuite, nous avons vu que nous étions capable de piéger optiquement des particules avec des tailles allant de l'échelle sub-micrométrique à quelques dizaines de nanomètres. Nous avons en particulier résolu les franges provenant des interférences des deux ondes contra-propagatives qui se traduisent par plusieurs positions métastables dans la direction axiale. Nous avons mesuré les raideurs de piégeage en constatant que la fréquence de lecture de la caméra de visualisation devenait limitée pour les plus petites particules. Ainsi, l'étude du signal retour est devenue primordiale pour caractériser le piégeage de nanoparticules. Nous avons mesuré des raideurs transverses de 35 et 2 pN $\mu\text{m}^{-1} \text{W}^{-1}$ respectivement pour des particules de YAG:Ce³⁺ de 300 et de 60 nm de diamètre, avec une distance de 3 μm entre les pointes.

Puis nous avons décrit des simulations numériques permettant d'avoir une meilleure compréhension sur les mécanismes de piégeage et de calculer les forces optiques appliquées aux particules de YAG de 300 et de 60 nm. Les raideurs optiques calculées sont qualitativement en accord avec les mesures expérimentales.

Enfin, nous avons réalisé des études de spectroscopie de luminescence sur des particules piégées. Nous avons ainsi mesuré l'émission de type up-conversion des bâtonnets NaYF₄:Er/Yb/Gd. Ces premiers résultats sont prometteurs pour l'étude de propriétés optiques de nanoparticules et en particulier leurs interactions avec leur environnement tel que des processus de transfert d'énergie.

CHAPITRE 5

Champ proche : pointes métallisées

5.1	Introduction	128
5.2	Pointes métallisées	129
5.2.1	Types de pointes	129
5.2.2	Fabrication	129
5.2.3	Caractérisation	131
5.3	Résultats en champ proche	133
5.3.1	Cavité inter-fibres	133
5.3.2	Couplage en champ proche	135
5.4	Conclusion	143

Dans tout ce que nous avons décrit jusqu'à présent, le piégeage optique a été réalisé en champ lointain avec des pointes non-métallisées et séparées de plusieurs microns. En piégeant des particules diélectriques de 60 nm, nous avons prouvé l'efficacité et le potentiel de notre pince dans cette configuration.

L'idée par la suite est de métalliser les fibres optiques afin de confiner le champ électromagnétique à l'extrémité des pointes et de réaliser des pinces plasmoniques.

Lors de ce dernier chapitre, nous commencerons par introduire le sujet en expliquant nos motivations et les difficultés rencontrées lors du piégeage en champ proche. Puis nous présenterons les deux types de pointes métallisées que nous avons utilisé, en expliquant leurs fabrications et leurs caractérisations. Enfin nous détaillerons les résultats expérimentaux. Dans un premier temps, nous verrons la création d'une cavité Fabry-Pérot, dont une partie du travail a été effectuée par Jean-François Bryche dans le cadre de son stage de Master [104]. Dans un second temps nous expliquerons plusieurs expériences mettant en évidence le couplage en champ proche. Nos mesures seront confirmées par des calculs théoriques.

5.1 Introduction

Nous avons vu précédemment que la taille minimale du faisceau émise par une pointe optique non métallisée était de l'ordre de la longueur d'onde. Lorsque le diamètre de la pointe devient inférieur à la taille du mode guidé, la lumière commence à fuir. C'est pour cette raison que nous couvrons le bout des fibres d'une couche métallique opaque. Ainsi la lumière est confinée jusqu'à l'extrémité de la pointe et nous obtenons des sources sub-longueur d'onde.

En positionnant deux pointes métallisées très proches l'une de l'autre (20 - 250 nm), nous pourrions significativement améliorer l'efficacité du piégeage avec des puissances optiques beaucoup plus faibles. Dans cette configuration, le piège optique n'est plus basé sur le champ EM lointain propagatif mais sur le champ proche évanescent, évoqué dans la partie **1.3**. Ainsi, la force répulsive de diffusion liée à la propagation de l'onde devient négligeable et seule la force de gradient reste présente.

Cependant nous avons rencontré deux principales difficultés pour piéger des particules avec des pointes métallisées :

- L'absorption résiduelle de la couche métallique ne permet pas d'utiliser des puissances optiques très élevées. D'une part, l'absorption du métal provoque des effets thermiques néfastes pour le piégeage. L'échauffement local de l'eau crée un gradient thermique et des mouvements de convection qui déstabilisent les particules. Même si ces effets sont parfois utilisés pour manipuler des objet [38, 105], ils sont dans la plupart des cas à éviter. Ainsi nous avons constaté qu'à partir de 0,8 mW, le mouvement des particules en suspension augmente très significativement rendant le piégeage délicat. D'autre part nous avons observé qu'au delà d'une puissance de 2 mW injectée, la couche d'or commence à se détériorer et à se détacher de la pointe.
- Le piégeage en champ proche doit être réalisé avec des distances très faibles entre les pointes. Cela implique que la particule à étudier doit être de taille nanométrique. La détection et le piégeage de nanoparticules étant maîtrisés en fin de ma thèse, nous n'avons pas eu le temps de les intégrer dans la configuration en champ proche.

Malgré ces difficultés, nous allons voir au cours de ce chapitre que nous avons mis en évidence le couplage en champ proche entre deux pointes métallisées, ouvrant des perspectives intéressantes pour le piégeage plasmonique.

5.2 Pointes métallisées

5.2.1 Types de pointes

Nous avons utilisé deux différents types de pointes métallisées pour effectuer des expériences de couplage en champ proche. Elles sont réalisées à partir des pointes optiques gravées par voie chimique, dont la fabrication est détaillée dans la partie **2.2.1**.

Pointes SNOM

Nous avons commencé par utiliser des pointes dont la fabrication a été développée dans notre équipe et qui est aujourd'hui parfaitement bien maîtrisée. Elles sont initialement utilisées pour des applications de microscopie optique à balayage en champ proche (NSOM pour "Near-field Scanning Optical Microscopy") [106]. Ces pointes sont métallisées avec de l'aluminium et leurs extrémités présentent une ouverture circulaire d'une centaine de nm de diamètre avec une certaine rugosité.

Pointes POPF

Basé sur ce savoir faire, nous avons développé dans un second temps un autre type de pointe spécialement pour la pince optique plasmonique fibrée (POPF). Celles-ci sont métallisées avec de l'or. Ce matériau est plus adapté à la plasmonique dans la gamme proche infrarouge et ne s'oxyde pas. Comme nous allons le voir, l'extrémité de ces pointes est coupée par un faisceau d'ion focalisé (FIB, "Focused Ion Beam") pour obtenir une ouverture lisse et plane. Ce paramètre est important pour des expériences en champ proche où les distances entre les pointes sont à l'échelle nanométrique.

5.2.2 Fabrication

Métallisation

Après l'étape de gravure chimique, les pointes sont métallisées par évaporation thermique [73, 107]. Elles sont placées dans une chambre sous un vide de l'ordre de 10^{-7} mbar. Les matériaux à déposer sont évaporés en chauffant des creusets par effet Joule. Ils se recondensent ensuite sur les pointes placées au-dessus pour former un manteau métallique (Fig. 5.1). Pendant l'évaporation, les pointes sont tournées à vitesse constante sur un axe afin d'obtenir une couche uniforme sur toute la circonférence des pointes. L'épaisseur déposée est contrôlée à l'aide d'une balance à quartz.

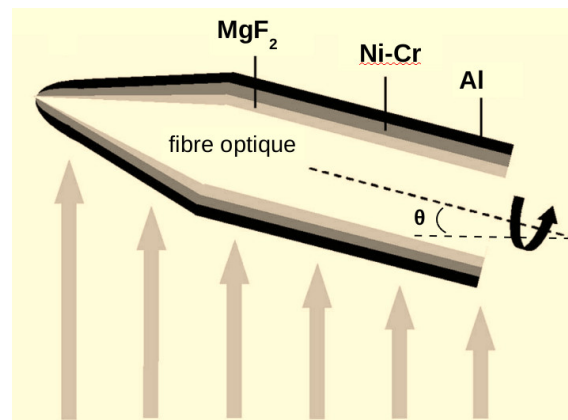


Figure 5.1: Principe de métallisation des pointes SNOM par évaporation thermique. Trois couches successives y sont déposées : MgF_2 , Ni-Cr et Al. [73]

Nous déposons ainsi successivement plusieurs couches de matériaux selon le type de pointe à réaliser :

- **Pointes SNOM** : trois couches successives y sont déposées.
 - Une centaine de nm de fluorure de magnésium (MgF_2) qui est un matériau diélectrique dont l'indice optique est proche de celui de la silice de la fibre. Ce dépôt permet d'obtenir directement une ouverture à l'extrémité de la pointe après métallisation. En pratique il épaissit la pointe qui est placée avec un angle θ au dessus de la normale, ce qui permet à l'apex de ne pas être exposé à l'évaporation du métal. L'épaisseur de la couche de MgF_2 permet directement de contrôler la taille de l'ouverture de la pointe.
 - Une couche d'accroche de quelques nanomètres de nickel-chrome (Ni-Cr) permettant d'assurer une meilleure adhérence du métal.
 - 100 à 150 nm d'aluminium (Al) qui constitue le manteau métallique. L'épaisseur est choisie afin d'être environ un ordre de grandeur supérieur à l'épaisseur de peau de l'Al, permettant d'assurer une bonne opacité et un confinement efficace de la lumière.
- **Pointes POPF** : nous déposons deux couches.
 - Une couche d'accroche de titane (Ti) de quelques nm.
 - 100 à 150 nm d'or (Au) qui est le manteau opaque permettant de confiner la lumière jusqu'à l'extrémité de la pointe.

Découpe par faisceau d'ion focalisé (FIB)

L'extrémité de la pointe POPF qui est complètement recouverte d'or après métallisation est ouverte en utilisant le FIB. Nous obtenons ainsi une ouverture propre et plane sans aucune rugosité. Cette étape est réalisée en salle blanche (Nanofab). Les pointes métallisées sont placées dans un MEB sous ultra-vide. Elles sont positionnées à 90° du faisceau d'ion qui enlève la matière progressivement à partir de l'extrémité de la pointe, jusqu'à ce que la taille de l'ouverture nous convienne. Le grand avantage de cette technique est son extrême précision nanométrique. Un autre avantage est de pouvoir observer en temps réel la progression de la découpe au MEB.

5.2.3 Caractérisation

Microscope électronique à balayage

L'imagerie au MEB est une étape essentielle qui permet de vérifier l'état de surface de la couche métallisée et la taille de l'ouverture à l'extrémité de la pointe. La Figure 5.2 présente des images MEB des deux types de pointes utilisées avant et après la découpe par FIB.

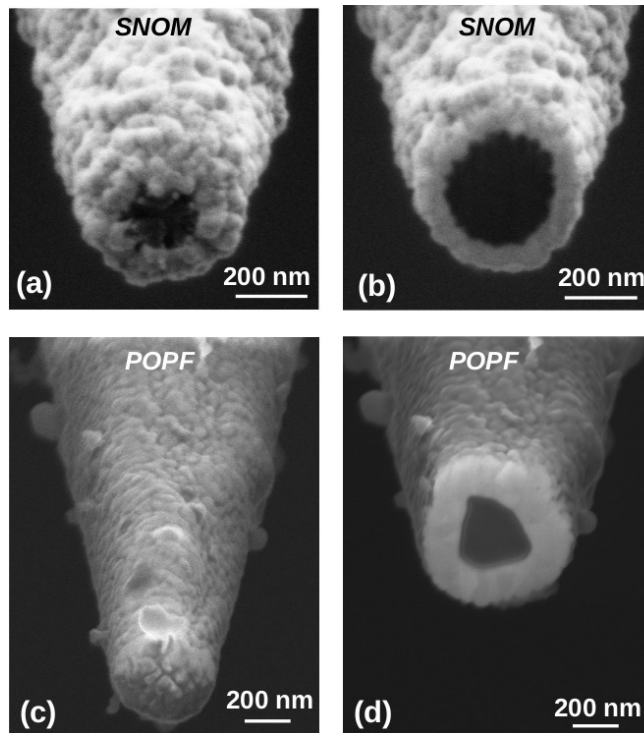


Figure 5.2: Pointes SNOM avant (a) et après découpe par faisceau d'ion focalisé (b). Pointes POPF avant (c) et après l'étape au FIB (d).

Sur la pointe SNOM, nous observons que l'extrémité est directement ouverte grâce à la couche de MgF_2 (Fig. 5.2.a). Cette couche permet également de donner une ouverture quasi-circulaire. Ici l'ouverture mesure 200 nm de diamètre. La couche d'Al est homogène sur toute la circonférence de la pointe et a une épaisseur de 110 nm. Enfin l'extrémité présente une surface assez rugueuse. Pour obtenir une surface plane, nous avons également coupé l'extrémité de la pointe SNOM au FIB. La méthode est efficace mais la taille de l'ouverture qui est ici de 380 nm de diamètre devient trop importante pour des expériences en champ proche (Fig. 5.2.b).

L'extrémité de la pointe POPF est totalement recouverte avant la découpe au FIB (Fig. 5.2.c). Le FIB nous permet donc d'ouvrir la pointe. Dans ce cas, la forme de l'ouverture peut être assez aléatoire et est rarement circulaire. Ce paramètre dépend de l'étape de gravure chimique qui ne donne pas toujours des pointes parfaitement coniques. Ce problème de gravure chimique qui n'est pas forcément homogène est connu. Ainsi nous obtenons régulièrement une ouverture de forme elliptique assez prononcée. Ici la taille de l'ouverture est de 260 nm. La couche d'or déposée est homogène et mesure 170 nm d'épaisseur. Ces formes anisotropes ne sont pas forcément un point négatif. Au contraire, nous verrons par la suite que cela va nous permettre notamment d'étudier des effets de polarisation sur l'émission en champ proche.

Spectre angulaire d'émission

La mesure angulaire du champ émis, dont le principe est détaillé dans la partie **2.2.2**, est particulièrement intéressante pour la caractérisation des pointes métallisées. Elle permet non seulement de vérifier la qualité de la pointe mais surtout, de déterminer la taille de l'ouverture à son extrémité. En effet, des études ont permis de relier la largeur à mi-hauteur (FWHM) du profil d'émission à la taille de l'ouverture optique [73]. Il a été observé que plus le profil d'émission était large et plus le diamètre de l'ouverture de la pointe D était faible. La relation empirique est la suivante :

$$D(\text{nm}) = 739 - 5,6\text{FWHM}(\text{°}) \quad (5.1)$$

Un spectre angulaire d'émission d'une pointe POPF est présenté sur la Figure 5.3. En comparaison avec une pointe non métallisée, le profil d'émission de la pointe POPF est beaucoup plus large. La largeur FWHM de son émission est de $90,9^\circ$, ce qui correspond à une ouverture optique de 230 nm.

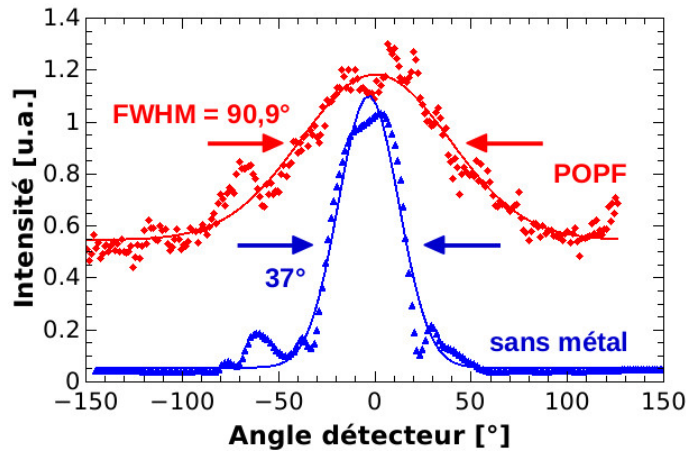


Figure 5.3: Spectre angulaire d'émission d'une pointe POPF (rouge) comparé avec une pointe non métallisée (bleu).

5.3 Résultats en champ proche

Nous avons effectué des mesures en transmission et en réflexion avec les pointes SNOM et POPF sur notre banc expérimental, comme expliqué dans la partie **2.2.2** [71]. Pour des mesures en champ proche, le contrôle et la stabilité de la distance entre les pointes est un paramètre essentiel. Notre système de contrôle actif de cette distance à l'échelle nanométrique devient alors primordial (voir partie **2.1.1**, Fig. 2.2).

5.3.1 Cavité inter-fibres

Pour commencer, nous avons réalisé des mesures avec deux pointes SNOM dans l'air, similaires à celle présentée sur la Figure 5.2.c. Les diamètres des ouvertures quasi-circulaires des deux pointes mesurées à partir des images MEB sont 276 et 246 nm. Des cartes en transmission et en réflexion sont présentées sur la Figure 5.4. Ces mesures sont réalisées avec une puissance de 300 μ W injectée dans la fibre émettrice.

Les cartes de transmission présentent une tâche de forme quasi-circulaire, en accord avec la forme des pointes. Nous mesurons un waist minimal $w^{min} = 375$ nm correspondant à un waist corrigé de $\tilde{w}^{min} = 375/\sqrt{2} = 265$ nm. Cette valeur est comparable à la taille de l'ouverture des pointes et elle est environ trois fois plus faible que la longueur d'onde du faisceau laser. La taille du spot transmis est donc clairement définie par l'ouverture des pointes et non plus par la longueur d'onde comme ce fut le cas avec les pointes non-métallisées. Nous sommes donc au delà de la limite de diffraction de la lumière.

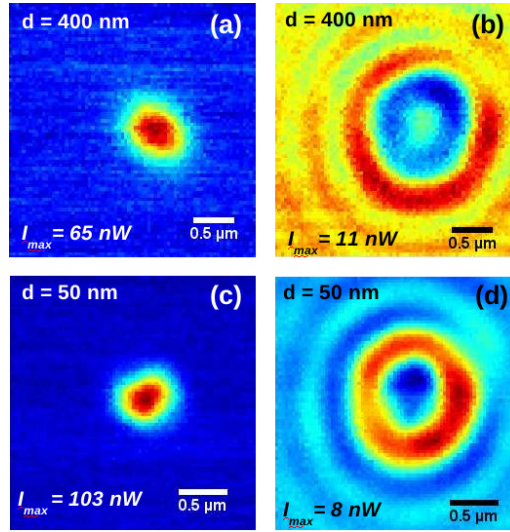


Figure 5.4: Cartes en transmission (a-c) et en réflexion (b-d) pour une paire de pointes SNOM distantes de $d = 400$ et 50 nm.

Nous observons également des franges circulaires et concentriques sur les cartes en réflexion (Figs. 5.4.b-d). Le point central correspond à la position de la tâche en transmission. Ces franges correspondent aux interférences entre l'onde réfléchie au bout de la pointe émettrice et celle réfléchie par la pointe réceptrice. Les intensités maximale et minimale de ces franges sont obtenues pour des distances :

$$d_m^{min} = \left(\frac{m}{2} + \frac{1}{4}\right) \cdot \lambda \quad (5.2)$$

$$d_m^{max} = \frac{m}{2} \cdot \lambda$$

avec m un nombre entier positif.

Les rayons r de trois franges successives constructives et destructives sont mesurées en fonction de la distance d entre les pointes (Fig. 5.5). Nous observons la diminution de r avec d . Ce comportement est expliqué en calculant le rayon théorique des franges (lignes Fig. 5.5). Pour ce faire, nous remplaçons simplement d dans l'équation 5.2 par $d' = \sqrt{d^2 + r^2}$ (voir insert).

L'observation de ces figures d'interférences en réflexion montre clairement que nous créons une cavité Fabry-Perot entre les deux pointes SNOM.

Nous mesurons que l'intensité du signal réfléchi est environ un ordre de grandeur plus faible que l'intensité transmise.

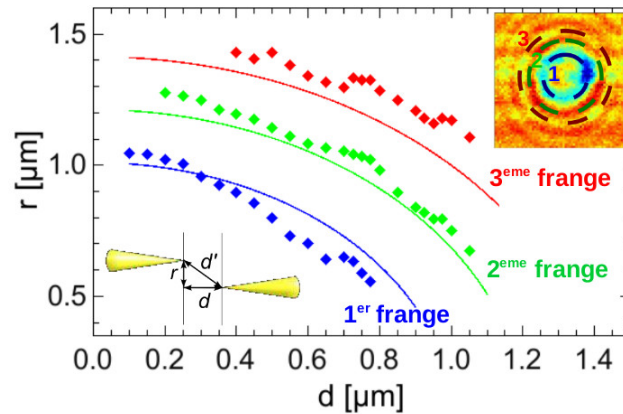


Figure 5.5: Rayon r des franges d'interférences en fonction de la distance d entre les pointes.

5.3.2 Couplage en champ proche

Transition champ proche / champ lointain

Nous réalisons ensuite des mesures en transmission avec deux pointes POPF dans l'air. La paire de pointes utilisées est présentée sur la Figure 5.6. Nous considérons que l'ouverture de la pointe émettrice est de forme elliptique avec un axe majeur et mineur respectivement de $a = 450$ et $b = 280$ nm. La pointe réceptrice a la forme d'un triangle quasi-équilatéral de 260 nm de côté.

Les mesures sont réalisées avec une puissance d'1 mW injectée dans la pointe émettrice. Nous mesurons en sortie de pointe seulement 1 μ W en champ lointain. Ces pertes d'émission de 30 dB sont essentiellement dues aux importantes pertes de la propagation de l'onde dans la région sub-longueur d'onde proche de l'extrémité de la pointe.

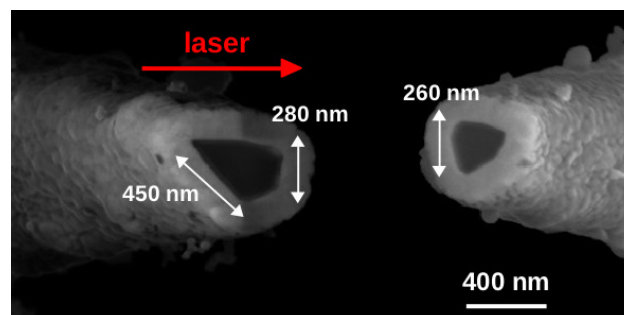


Figure 5.6: Image MEB de la paire de pointes métallisées POPF.

Nous constatons que pour une distance entre les pointes $d = 100$ nm, le spot mesuré en transmission est de forme elliptique (Fig. 5.7.a). À mesure que la distance augmente, le spot devient progressivement circulaire (Fig. 5.7.b).

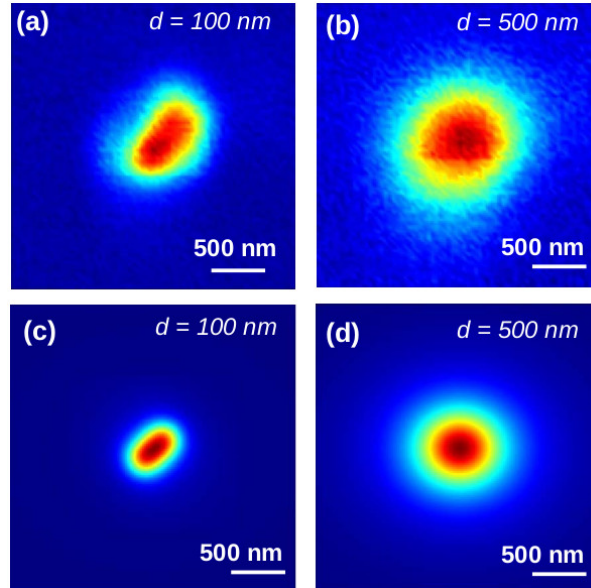


Figure 5.7: .Cartes d'intensité mesurées en transmission avec une distance de 100 nm (a) et 500 nm (b) entre les pointes. (c)-(d) Cartes d'intensité calculées dans les mêmes conditions.

Nous mesurons la taille du faisceau transmis suivant les axes majeur et mineur de l'ellipse pour plusieurs distances entre les pointes (points Fig. 5.8.a). Les valeurs sont corrigées en convoluant les waists mesurés avec une fonction Gaussienne ayant un waist correspondant à l'ouverture de la fibre réceptrice. Ici l'ouverture triangulaire de la pointe émettrice est approximée avec une forme circulaire de même surface. Les waists minimaux corrigés selon l'axe majeur et mineur sont respectivement : $\tilde{w}_a^{min} = 428$ nm et $\tilde{w}_b^{min} = 243$ nm. Ces valeurs sont très proches des dimensions de la pointe elliptique émettrice.

L'excentricité d'une ellipse est définie par $\sqrt{a^2 - b^2}/a$ avec a et b respectivement la longueur de l'axe majeur et de l'axe mineur. Nous remarquons que plus les pointes sont proches et plus l'excentricité est importante, c'est à dire plus la forme elliptique du spot est prononcée (Fig. 5.8.b). Cette observation met en évidence la transition entre le champ lointain et le champ proche. En effet, pour des grandes distances, la lumière est transmise en champ lointain et nous ne pouvons pas résoudre la forme des pointes qui ont des dimensions plus petites que la limite de diffraction. Au contraire pour les plus petites distances, la lumière est transmise en champ proche et

la forme des deux pointes détermine la forme du faisceau transmis. Nous mesurons une excentricité maximale de 0,77 ce qui est comparable à celle de la pointe émettrice (0,78).

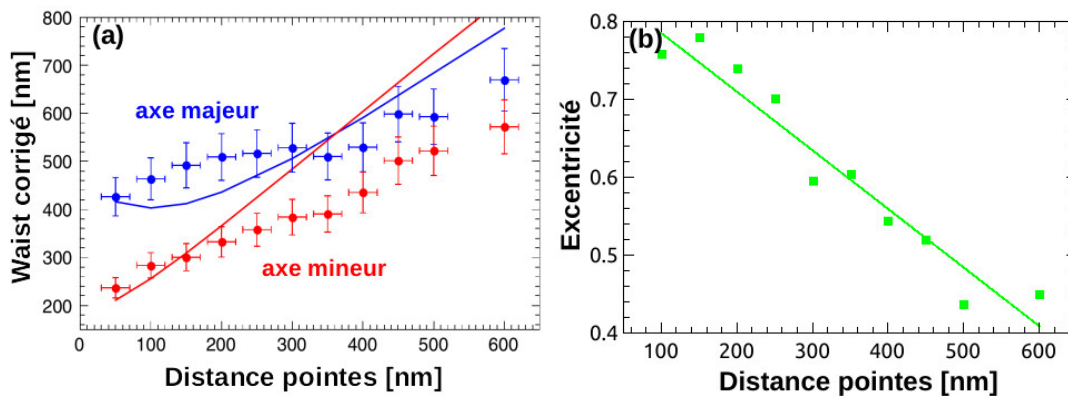


Figure 5.8: (a) Taille du faisceau elliptique mesurée (points) et calculée (lignes) selon les axes majeur et mineur en fonction de la distance d entre les points. (b) Excentricité mesurée de l'ellipse en fonction de d .

Contrairement aux pointes SNOM, nous n'avons pas observé de signal en réflexion. Cette différence est due à l'état de surface de l'extrémité des pointes POPF qui ne présentent aucune rugosité. Par conséquent, une interférence efficace des réflexions peut seulement être obtenue lorsque les pointes sont alignées de manière parfaitement parallèles.

Pour expliquer les distributions en intensité mesurées, nous avons calculé le champ électromagnétique émis par la pointe POPF. L'ouverture de la pointe émettrice est approximée avec une ellipse ayant les mêmes dimensions que dans l'expérience. Nous supposons que l'intensité optique au niveau de l'ouverture de la pointe est uniforme. Elle est représentée par une distribution homogène de paires de dipôles électrique p et magnétique m cohérentes et orthogonales. Celles-ci sont calculées à partir du champ électromagnétique incident (E^i, H^i) :

$$\begin{aligned}
 p &= \frac{i}{2\pi c} \hat{k} \times H^i \\
 m &= -\frac{i}{2\pi c} \hat{k} \times E^i
 \end{aligned}
 \tag{5.3}$$

avec $\hat{k} = \frac{E^i \times H^i}{|E^i \times H^i|}$ le vecteur d'onde normalisé et c la vitesse de la lumière.

Le champ électrique émis par une paire de dipôle est donné par [108] :

$$E(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[(\hat{r} \times p) \times \hat{r} \frac{k_0^2}{r} + [3\hat{r}(\hat{r} \cdot p) - p] \left(\frac{1}{r^3} - \frac{ik_0}{r^2} \right) - \frac{1}{Z_0} (\hat{r} \times m) k^2 \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{ik_0 r^2} \right) \right] e^{ikr} \quad (5.4)$$

avec ϵ_0 la permittivité du vide, r la distance à partir du dipôle, $k_0 = 2\pi/\lambda$ et Z_0 respectivement le nombre d'onde et l'impédance dans l'espace libre.

La distribution en intensité est alors obtenue en additionnant les contributions de toutes les paires de dipôles en champ proche et en champ lointain, et en calculant le carré du champ électrique. Les cartes d'intensité sont calculées pour les mêmes distances que dans l'expérience (Figs. 5.7.c-d). Les formes des faisceaux calculés sont en accord avec celles mesurées expérimentalement. Le faisceau est de forme elliptique pour une distance $d = 100 \text{ nm}$ et quasi-circulaire pour $d = 500 \text{ nm}$.

La taille du faisceau calculé suivant les axes majeur et mineur est également tracée en fonction de d (lignes Fig. 5.8.a). Les valeurs concordent assez bien pour les petites distances mais divergent pour les plus grandes distances. Nous estimons que ces différences sont principalement dues aux approximations concernant la forme de l'ouverture de la pointe dans notre modèle et à la très faible intensité transmise dans l'expérience pour les plus grandes distances, rendant les mesures délicates.

Études en polarisation

Nous avons réalisé une seconde série de mesures avec des distances encore plus proches entre deux pointes POPF qui sont cette fois immergées dans l'eau. Nous avons étudié les effets de polarisation de la lumière sur l'émission en champ proche. Pour cette expérience, nous avons choisi d'utiliser une pointe émettrice ayant une ouverture de forme elliptique très prononcée (Fig. 5.9).

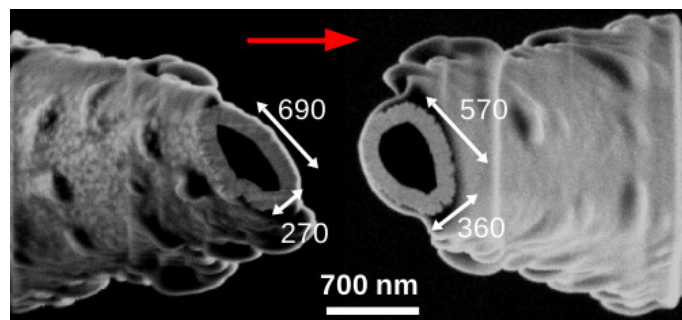


Figure 5.9: Image MEB d'une seconde paire de pointes métallisées POPF avec une pointe émettrice très excentrique.

Celle-ci a un axe majeur et mineur qui mesure respectivement $a_e = 690$ et $b_e = 270$ nm, correspondant à une excentricité de 0,92. L'ouverture de la pointe réceptrice est également elliptique mais avec une plus faible excentricité de 0,77 : $a_r = 570$ et $b_r = 360$ nm.

Nous réalisons une première série de mesures en transmission, en variant la distance entre les points $d = 30 - 400$ nm pour deux polarisations de la lumière incidente orientées orthogonalement (Fig. 5.10.a). Nous n'avons pas séparé d'avantage les pointes, le signal transmis étant ensuite trop faible pour être détecté.

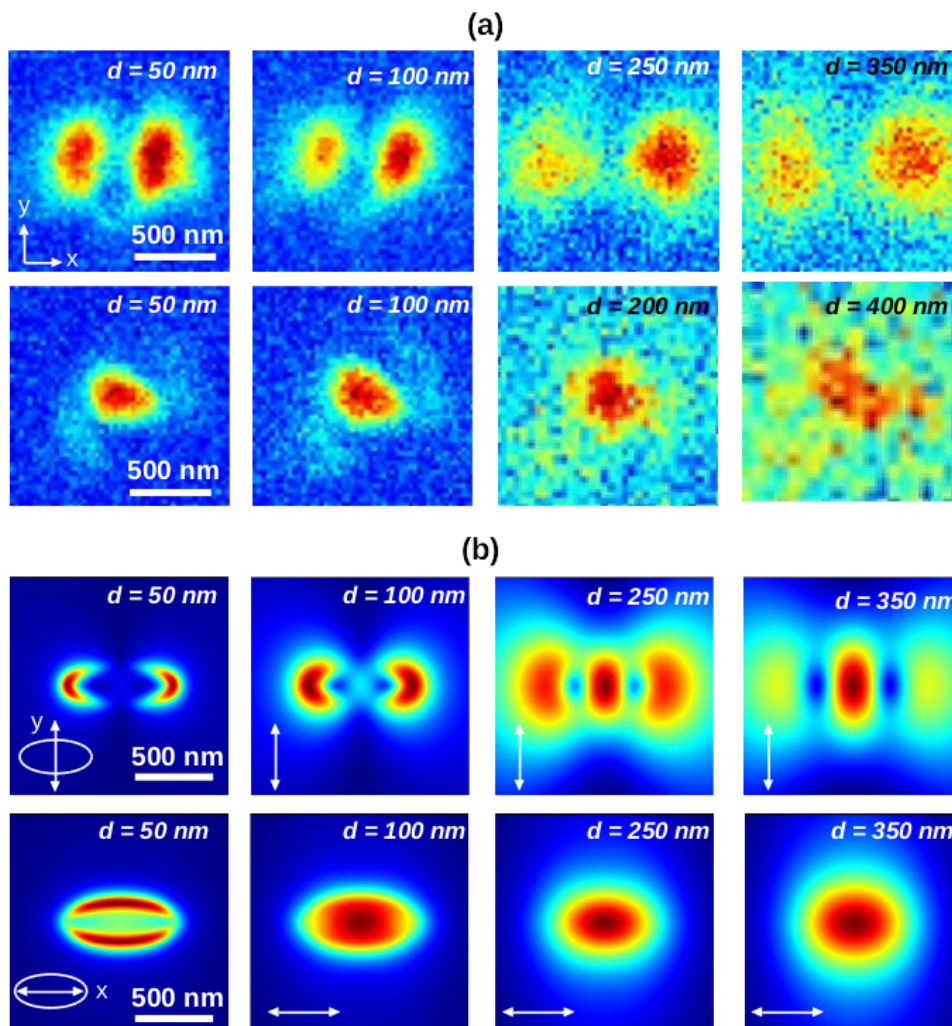


Figure 5.10: Cartes d'intensité en transmission mesurées (a) et calculées (b) avec deux polarisations orientées suivant l'axe majeur et l'axe mineur de l'ellipse pour différentes distances d .

Nous observons clairement deux lobes dans les cartes en transmission pour la première polarisation. Pour la polarisation orientée orthogonalement, nous n'observons plus qu'un seul lobe. Dans les deux cas, la taille des faisceaux s'élargit avec la distance. Pour une distance $d > 200$ nm, l'intensité du signal transmis est extrêmement faible.

À partir de ces mesures, nous constatons qu'il serait intéressant d'étudier plus en détail les effets de polarisation sur l'émission en champ proche. C'est dans ce but que nous avons réalisé une seconde série de mesures en tournant la polarisation de la lumière injectée dans la pointe émettrice de 0 à 180°. La distance d est fixée à 50 nm (Fig. 5.11.a).

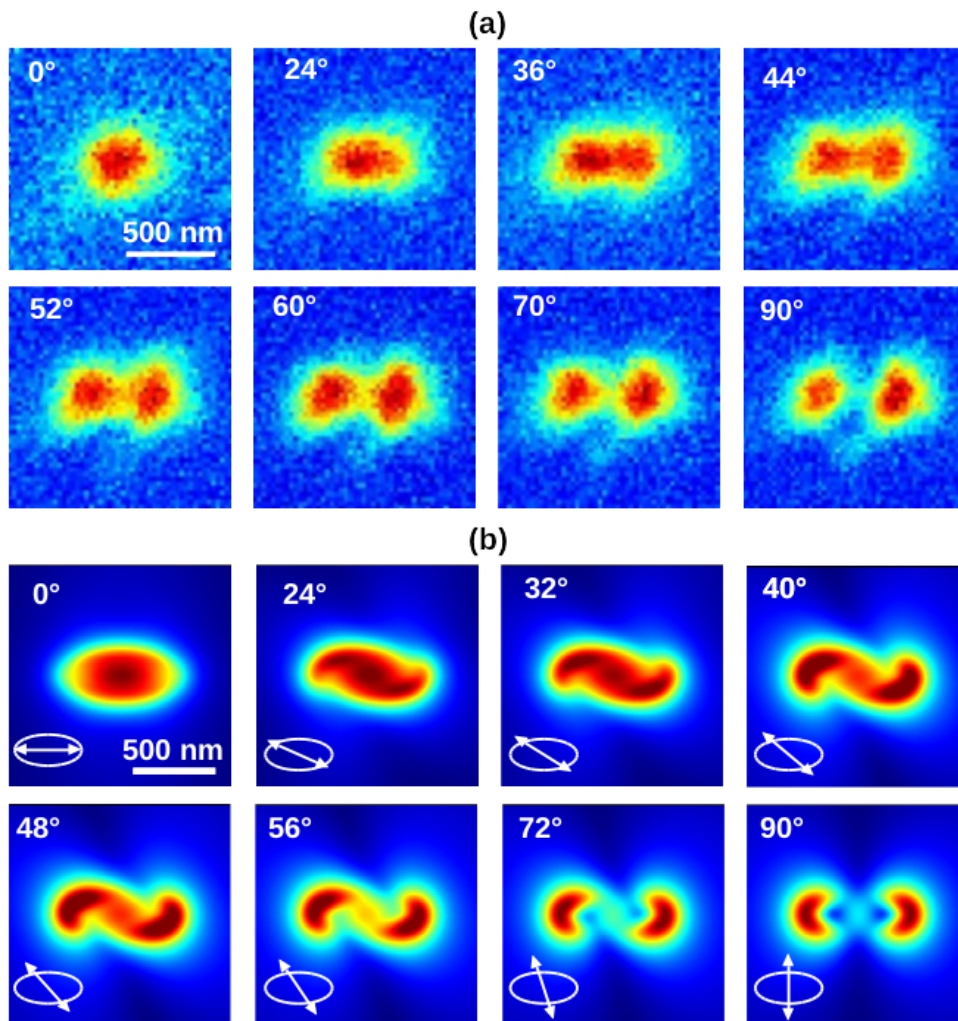


Figure 5.11: Cartes d'intensité en transmission mesurées (a) et calculées (b) avec différentes orientations de la polarisation dans la pointe émettrice. $d = 50$ nm

Nous observons que la distance entre les deux lobes varie avec l'angle de polarisation. Pour une polarisation à 0° , nous obtenons un seul spot confondu. Puis celui-ci se sépare à mesure que l'angle tend vers 90° jusqu'à obtenir deux spots complètement définis. Enfin de 90° à 180° , les deux spots se rapprochent jusqu'à se confondre de nouveau.

Les profils d'intensité suivant l'axe horizontal à partir des cartes mesurées en transmission sont tracés sur la Figure 5.12.a. Ils confirment ce que nous avons observé précédemment. Les deux lobes sont de plus en plus séparés lorsque l'angle de la polarisation augmente jusqu'à 90° . Ils sont séparés par une distance maximale de 530 nm pour une polarisation à 90° .

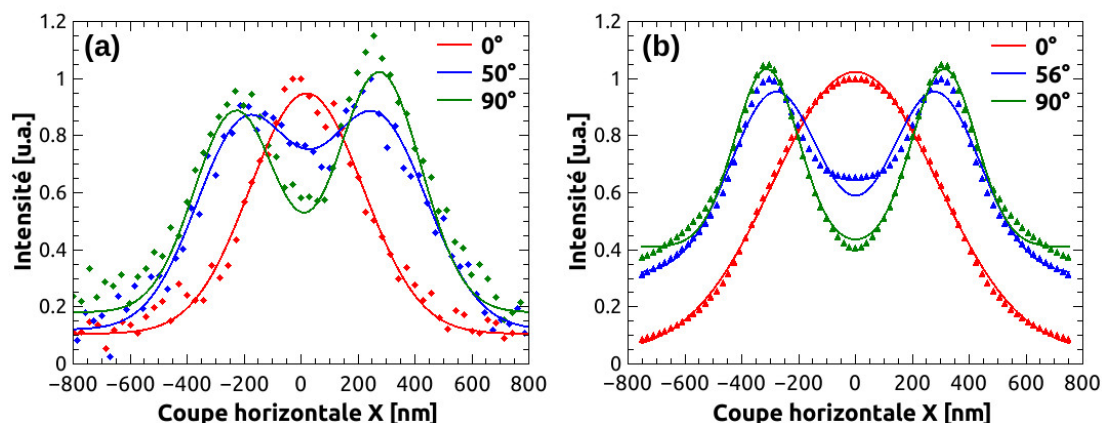


Figure 5.12: Profils d'intensité transmise mesurés (a) et calculés (b) suivant l'axe horizontal avec trois angles de polarisation. Les lignes sont des ajustements Gaussiens.

Nous avons de nouveau calculé le champ électromagnétique pour expliquer les mesures expérimentales. Cette fois-ci, la pointe émettrice de forme elliptique est représentée par un courant localisé dans son manteau métallique. Le champ électrique est alors calculé en utilisant une approche de tenseur de Green.

Le champ électrique émis $E(r)$ est défini par [109] :

$$E(r) = E_0(r) + i\omega\mu_0 \int_V G(r,r')j(r')dV' \quad (5.5)$$

avec $j(r')$ la densité de courant et $G(r,r')$ la fonction de Green :

$$G(r,r') = [\ddot{\mathbf{I}} + \frac{1}{k^2}\nabla\nabla]G_0(r,r') \quad (5.6)$$

et

$$G_0(r, r') = \frac{1}{4\pi|r - r'|} e^{ik|r - r'|} \quad (5.7)$$

avec $\ddot{\mathbb{I}} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$ et $\nabla\nabla$ étant l'opérateur différentiel tensoriel défini en coordonnées cartésiennes par :

$$\nabla\nabla = \begin{bmatrix} \partial_x^2 & \partial_x\partial_y & \partial_x\partial_z \\ \partial_y\partial_x & \partial_y^2 & \partial_y\partial_z \\ \partial_z\partial_x & \partial_z\partial_y & \partial_z^2 \end{bmatrix} \quad (5.8)$$

Les cartes d'intensité sont alors obtenues en calculant le carré du champ électrique total.

Elles sont d'abord calculées avec deux polarisations orientées suivant l'axe majeur et l'axe mineur de l'ellipse avec différentes distances pour reproduire les conditions expérimentales de la première série de mesures expérimentales (Fig. 5.10.b). Le modèle reproduit deux lobes d'intensité pour $d = 50$ nm suivant les deux polarisations. Pour des plus grandes distances et avec la polarisation orientée suivant l'axe mineur, les deux lobes divergent et un spot central prend progressivement le dessus. Avec la polarisation suivant l'axe majeur, les deux lobes ne sont plus visibles pour $d \geq 100$ nm.

Nous constatons que le modèle théorique permet d'expliquer qualitativement nos mesures et notamment l'apparition des deux lobes dans les cartes d'intensité. Nous observons cependant plusieurs différences. Celles-ci peuvent être de nouveau dues à l'approximation que nous donnons à la forme de l'ouverture de la pointe émettrice.

Nous avons également calculé le champ pour différentes polarisations, dans les mêmes conditions que la seconde série de mesures (Fig. 5.11.b). Les résultats sont très similaires et permettent d'expliquer la séparation des deux lobes. Pour des angles de polarisation le long (à 0°) ou proche de l'axe majeur de l'ellipse, les deux lobes sont très rapprochés et ne peuvent donc pas être définis. Puis plus l'angle de polarisation tend vers l'axe mineur de l'ellipse (90°), plus les deux lobes se séparent.

Cet effet est confirmé en traçant les profils d'intensité à partir des cartes de champ calculées (Fig. 5.12.b). Nous obtenons deux lobes séparés avec une distance maximale de 625 nm lorsque la polarisation est orientée suivant l'axe mineur de l'ellipse. Cette valeur est un peu plus élevée que celle obtenue expérimentalement (530 nm) mais l'ordre de grandeur est respecté. Elles correspondent également assez bien à l'ouverture suivant le grand axe de la pointe émettrice (690 nm).

Il est important de noter que nos modèles ne prennent pas en compte l'influence de la pointe réceptrice dans la distribution du champ. Cependant nous avons pu constater

que ces calculs nous permettent d'expliquer et de reproduire qualitativement les mesures expérimentales.

5.4 Conclusion

Pour résumer, nous avons mis en évidence le couplage en champ proche entre deux pointes métallisées. Après avoir détaillé leur fabrication et leur caractérisation, nous avons en particulier :

- crée une cavité Fabry-Pérot entre les deux pointes, avec l'apparition de franges d'interférences concentriques dans les cartes en réflexion.
- confiné l'émission du champ électromagnétique aux extrémités des pointes, au delà de la limite de diffraction de la lumière.
- mis en évidence la transition champ lointain - champ proche avec l'augmentation de l'excentricité elliptique du faisceau transmis en rapprochant les pointes. Pour les plus petites distances, l'excentricité du faisceau correspond à celle de l'ouverture de la pointe émettrice.
- observé l'apparition de deux lobes dans les cartes d'intensité en transmission, dont leur séparation dépend de la polarisation de la lumière incidente. Nous avons également calculé le champ électromagnétique permettant d'expliquer qualitativement ce phénomène.

Ces derniers résultats ouvrent des perspectives encourageantes pour le développement d'une pince plasmonique fonctionnant en champ proche pour le piégeage de nanoparticules.

Conclusions et perspectives

L'objectif de ces travaux de thèse a été de développer une pince optique fibrée dans le but de piéger des particules diélectriques en solution. Une partie importante du travail a été consacrée à mettre en place un dispositif expérimental permettant d'atteindre cet objectif. Nous avons en particulier développé un système d'injection efficace pour le piégeage optique et un système de visualisation des nanoparticules. Nous avons également utilisé des outils permettant de caractériser le piégeage. En analysant le mouvement Brownien résiduel de la particule piégée, nous avons été capable de déterminer les forces et les raideurs optiques appliquées à celle-ci. Le signal retour réfléchi par la particule a aussi été exploité.

Les études expérimentales ont porté dans un premier temps sur le piégeage de particules sphériques d'1 μm de diamètre. Nous avons démontré que notre pince était efficace et parfaitement adaptée pour ce type de particule. Nous avons mesuré la constante de raideur optique en utilisant trois différentes méthodes : la statistique de Boltzmann, l'analyse fréquentielle et l'autocorrélation. Nous avons vu que la raideur progressait linéairement avec la puissance du laser et était inversement proportionnelle au carré de la distance entre les pointes. Une raideur transverse de $415 \text{ pN } \mu\text{m}^{-1} \text{ W}^{-1}$ est mesurée pour une distance de 3 μm entre les pointes.

En manipulant une particule de manière contrôlée à l'aide d'un flux ou d'une modulation de l'intensité du laser, nous avons directement mesuré les forces optiques appliquées à la particule à partir de sa vitesse. Ces mesures ont également permis de démontrer que le potentiel de notre pince était de forme harmonique dans les directions axiale et transverse à l'axe des fibres.

Nous avons aussi démontré que les caractéristiques de notre pince pouvaient être améliorées en utilisant d'autre type de faisceau. Des nano-antennes émettant des faisceaux quasi-Bessel non-diffractifs ont permis de piéger simultanément jusqu'à cinq microparticules avec des distances inter-fibres très importantes (65 μm) et avec une intensité lumineuse relativement faible.

Les résultats obtenus à partir de l'étude des nanoparticules luminescentes de YAG:Ce³⁺ ont été les plus significatifs de cette thèse. Une partie de ces travaux a consisté à synthétiser et à caractériser des nanoparticules ayant des propriétés adaptées pour le piégeage optique. À savoir, de bonnes propriétés optiques (notamment la photostabilité), une bonne stabilité dans l'eau et une distribution en taille bien définie. Au final, nous avons obtenu deux solutions de particules de YAG:Ce³⁺ quasi-sphériques de 55 ± 10 nm et 280 ± 100 nm de diamètre.

Des nanoparticules de ces deux tailles ont alors été piégées de manière stable et reproductible. Ce résultat est loin d'être trivial pour une pince optique opérant en champ lointain. En analysant le piégeage de ce type de particules, nous avons observé de nouveaux effets qui n'étaient pas visibles avec les microparticules. Ainsi, plusieurs positions métastables de piégeage ont été obtenues dans la direction axiale, traduit par plusieurs pics dans les distributions statistiques en position. Les particules de 300 nm ont été piégées au niveau des franges d'interférences provenant des deux faisceaux contra-propagatifs. Quant aux particules de 60 nm, nous avons vu qu'elles pouvaient être attirées au bout des deux pointes par la force de gradient.

Nous avons également exploité un autre système de détection : le signal retour réfléchi par la particule (notamment). Celui-ci a pu être obtenu avec une fréquence de lecture beaucoup plus importante que celle de la caméra. Il nous permet ainsi d'étudier précisément la dynamique des nanoparticules. Nous avons mesuré des raideurs de piégeage transverses de 35 et 2 pN $\mu\text{m}^{-1} \text{W}^{-1}$ respectivement pour des particules de YAG:Ce³⁺ de 300 et de 60 nm de diamètre, avec une distance de 3 μm entre les pointes. L'efficacité de notre pince fibrée a donc été démontrée pour le piégeage de nanoparticules diélectriques.

Un travail récent a consisté à piéger des particules anisotropes de NaYF₄:Er/Yb/Gd qui présentent une émission de type up-conversion. Nous avons réalisé des expériences de spectroscopie de luminescence sur ces particules piégées libres en suspension. Ces premières mesures ouvrent de nouvelles perspectives pour l'étude de propriétés optiques de nanoparticules piégées, comme nous le verrons par la suite.

Pour terminer ce bilan, nous avons mis en évidence expérimentalement le couplage en champ proche entre deux pointes optiques métallisées distantes de moins de 100 nm. Nous avons notamment été capable de confiner le champ électromagnétique bien au delà de la limite de diffraction. Nous avons aussi observé l'apparition de deux lobes dans l'émission de l'intensité transmise, dont leur séparation dépendait de la polarisation de la lumière. Des calculs analytiques du champ électromagnétique nous ont permis d'expliquer qualitativement nos mesures. Ces derniers résultats ouvrent également des perspectives encourageantes pour le développement d'une pince plasmonique fonctionnant en champ proche pour le piégeage de nanoparticules.

Pour conclure, le dispositif expérimental développé pendant ces travaux est aujourd'hui suffisamment mûr pour piéger aisément des particules en suspension de taille micro et nanométriques. Il offre différentes perspectives très intéressantes pouvant être réalisées dans un avenir proche.

- **La pince plasmonique.** Après avoir démontré le couplage en champ proche et le piégeage de nanoparticules en champ lointain, un important travail de développement est encore nécessaire pour démontrer le piégeage de nanoparticules avec la pince plasmonique. Celle-ci devrait permettre d'amplifier de plusieurs ordres de grandeur les forces optiques et de piéger des nanoparticules encore plus petites avec de plus faibles intensités lumineuses. Ce dernier point permettrait d'étudier des objets biologiques de taille nanométrique sans les endommager.
- **L'étude des propriétés spectroscopiques de nanoparticules piégées.** Nous avons démontré qu'il était possible de détecter la luminescence de particules individuelles piégées en suspension. Cet outil devrait permettre de nombreuses études originales dans le futur. Par exemple, nous pourrions exploiter l'anisotropie des particules de $\text{NaYF}_4 : \text{Er}/\text{Yb}/\text{Gd}$ pour visualiser leurs propriétés spectroscopiques en fonction de leurs orientations au sein du piège. Nous pourrions également comparé en détail l'émission entre une et plusieurs particules piégées [110]. L'étude de l'interaction entre plusieurs particules libres et avec leur environnement tel que des processus de transfert d'énergie serait intéressant. Enfin d'autres systèmes luminescents tel que des nanodiamants contenant des centres NV ("Nitrogen Vacancy" ou lacune d'azote) permettraient d'étudier l'influence du piégeage optique sur les propriétés d'émission au niveau d'un émetteur à photons uniques [111].
- **Le piégeage de particule dans l'air.** Toutes nos expériences ont été réalisées en milieu aqueux. Théoriquement, le piégeage de nanoparticules est plus efficace dans l'air que dans l'eau. En effet, dans l'approximation dipolaire les forces optiques sont proportionnelles au contraste d'indice entre la particule et le milieu environnant. Ce contraste étant plus important dans l'air que dans l'eau, les forces optiques sont plus importantes [112]. Toute la difficulté réside dans le fait d'introduire la particule dans le piège. Les forces optiques ne sont pas suffisamment grandes pour surpasser les forces d'adhésions et pour simplement piéger les particules posées sur une surface. Différentes méthodes sont proposées dans la littérature telles que de faire vibrer une surface avec un actionneur piézoélectrique pour décoller les particules [113] ou de pulvériser des gouttelettes d'aérosols [112].

Bibliographie

- [1] A. ASHKIN, J. M. DZIEDZIC, J. E. BJORKHOLM et S. CHU : « Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles ». *Opt. Lett.* (1986), t. 11 : p. 288 (cf. p. 1, 6, 7, 19).
- [2] A. ASHKIN : « Acceleration and trapping of particules by radiation pressure ». *Phys. Rev. Lett.* (1970), t. 24 : p. 156 (cf. p. 6).
- [3] A. ASHKIN et J. M. DZIEDZIC : « Optical levitation by radiation pressure ». *App. Phys. Lett.* (1971), t. 19 : p. 283 (cf. p. 6).
- [4] A. ASHKIN et J. M. DZIEDZIC : « Observation of radiation-pressure trapping of particles by alternating light beams ». *Phys. Rev. Lett.* (1985), t. 54 : p. 1245 (cf. p. 6).
- [5] A. ASHKIN et J. M. DZIEDZIC : « Optical trapping and manipulation of viruses and bacteria ». *Science* (1987), t. 235 : p. 1517 (cf. p. 6).
- [6] A. ASHKIN, J. M. DZIEDZIC et T. YAMANE : « Optical trapping and manipulation of single cells using infrared laser beams ». *Nature* (1987), t. 330 : p. 769 (cf. p. 6).
- [7] A. ASHKIN : « Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime ». *Biophys. J.* (1992), t. 61 : p. 569 (cf. p. 7).
- [8] W. H. WRIGHT, G. J. SONEK et M. W. BERNIS : « Radiation trapping forces on microspheres with optical tweezers ». *Appl. Phys. Lett* (1993), t. 63 : p. 715 (cf. p. 7, 8).
- [9] M. DIENEROWITZ, M. MAZILU et K. DHOLAKIA : « Optical manipulation of nanoparticles : a review ». *J. Nanophotonics* (2008), t. 2 : p. 021875 (cf. p. 8, 10).
- [10] P. C. CHAUMET et M. NIETO-VESPERINAS : « Time-averaged total force on a dipolar sphere in an electromagnetic field ». *Opt. Lett.* (2000), t. 25 : p. 1065 (cf. p. 10).

-
- [11] P. ZEMÀNEK, V. KARÀSEK et A. SASSO : « Optical forces acting on Rayleigh particle placed into interference field ». *Opt. Commun.* (2004), t. 240 : p. 401 (cf. p. 10).
- [12] Y. HARADA et T. ASAKURA : « Radiation forces on a dielectric sphere in the Rayleigh scattering regime ». *Opt. Commun.* (1996), t. 124 : p. 529 (cf. p. 12).
- [13] D. G. GRIER : « A revolution in optical manipulation ». *Nature* (2003), t. 424 : p. 810 (cf. p. 14–16, 84).
- [14] E. R. DUFRESNE et D. G. GRIER : « Optical tweezer arrays and optical substrates created with diffractive optics ». *Rev. Sci. Instrum.* (1998), t. 69 : p. 1974 (cf. p. 15).
- [15] J. E. CURTIS, B. A. KOSS et D. G. GRIER : « Dynamic holographic optical tweezers ». *Opt. Commun.* (2002), t. 207 : p. 169 (cf. p. 15, 16).
- [16] J. E. CURTIS et D. G. GRIER : « Structure of optical vortices ». *Phys. Rev. Lett.* (2003), t. 90 : p. 133901 (cf. p. 16).
- [17] A. TERRAY, J. OAKEY et D.W.M. MARR : « Fabrication of linear colloidal structures for microfluidic applications ». *App. Phys. Lett.* (2002), t. 81 : p. 1555 (cf. p. 17).
- [18] E. TOWNES-ANDERSON, R. S. ST JULES, D. M. SHERRY, J. LICHTENBERGER et M. HASSANAIN : « Micromanipulation of retinal neurons by optical tweezers ». *Mol. Vision* (1998), t. 4 : p. 12 (cf. p. 18).
- [19] M. S. Z. KELLERMAYER, S. B. SMITH, C. BUSTAMANTE et H. L. GRANZIER : « Mechanical fatigue in repetitively stretched single molecules of titin ». *Biophys. J.* (2001), t. 80 : p. 852 (cf. p. 18).
- [20] C. COIRAULT, J. L. SAMUEL, D. CHEMLA, J. C. POURNY, F. LAMBERT, F. MAROTTE et Y. LECARPENTIER : « Increased compliance in diaohragm muscle of the cardiomyopahic Syrian hamster ». *J. Appl. Physiol.* (1998), t. 85 : p. 1762 (cf. p. 18).
- [21] J. SLEEP, D. WILSON, R. SIMMONS et W. GRATZER : « Elasticity of the red cell membrane and its relation to hemolytic disorders : an optical tweezers study ». *Biophys. J.* (1999), t. 77 : p. 3085 (cf. p. 18).
- [22] K. KÖNIG, L. SVAASAND, Y. LIU, G. SONEK, P. PATRIZIO, Y. TADIR, M. W. BERNIS et B. J. TROMBERG : « Determination of mobility forces of human spermatozoa using an 800 nm optical trap ». *Cell. Mol. Biol.* (1996), t. 42 : p. 501 (cf. p. 18).

- [23] N. KHATIBZADEH, A. B. STILGOE, A. A. M. BUI, Y. ROCHA, G. M. CRUZ, V. LOKE, L. Z. SHI, T. A. NIEMINEN, H. RUBINSZTEIN-DUNLOP et M. W. BERNS : « Determination of mobility forces on isolated chromosomes with laser tweezers ». *Sci. Rep.* (2014), t. 4 : p. 6866 (cf. p. 18).
- [24] J. GELLES et R. LANDICK : « RNA polymerase as a molecular motor ». *Cell.* (1998), t. 93 : p. 13 (cf. p. 19).
- [25] M. RIGHINI, C. GIRARD et R. QUIDANT : « Light-induced manipulation with surface plasmons ». *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.* (2008), t. 10 : p. 093001 (cf. p. 20).
- [26] S. KAWATA et T. SUGIURA : « Movement of micrometer-sized particules in the evanescent field of a laser beam ». *Opt. Lett.* (1992), t. 17 : p. 772 (cf. p. 20).
- [27] T. CIZMAR, M. SILER, M. SERY, P. ZEMANEK, V. GARCES-CHAVEZ et K. DHOLAKIA : « Optical sorting and detection of submicrometer objects in a motional standing wave ». *Phys. Rev. B* (2006), t. 74 : p. 035105 (cf. p. 20).
- [28] P. C. CHAUMET, A. RAHMANI et M. NIETO-VESPERINAS : « Optical trapping and manipulation of nano-objects with an apertureless probe ». *Phys. Rev. Lett.* (2002), t. 88 : p. 123601 (cf. p. 20).
- [29] K. OKAMOTO et S. KAWATA : « Radiation force exerted on subwavelength particles near a nanoaperture ». *Phys. Rev. Lett.* (1999), t. 83 : p. 4534 (cf. p. 20).
- [30] E.-S. KWAK, T.-D. ONUTA, D. AMARIE, R. POTYRAILO, B. STEIN, S. C. JACOBSON, W. L. SCHAICH et B. DRAGNEA : « Trapping with integrated near-field apertures ». *J. Phys. Chem. B* (2004), t. 108 : p. 13607 (cf. p. 20).
- [31] M. RIGHINI, P. GHENUCHE, S. CHERUKULAPPURATH, V. MYROSHNYCHENKO, F. J. GARCIA DE ABAJO et R. QUIDANT : « Nano-optical trapping of rayleigh particles and escherichia coli bacteria with resonant optical antennas ». *Nano Lett.* (2009), t. 9 : p. 3387 (cf. p. 20).
- [32] S. KAWATA et T. TANI : « Optically driven Mie particles in an evanescent field along a channeled waveguide ». *Opt. Lett.* (1996), t. 21 : p. 1768 (cf. p. 21).
- [33] K. GRUJIC, O. G. HELLESO, J. P. HOLE et J. S. WILKINSON : « Sorting of polystyrene microspheres using a Y-branched optical waveguide ». *Opt. Express* (2005), t. 13 : p. 1 (cf. p. 21).
- [34] O. G. HELLESO, P. LOVHAUGEN, A. Z. SUBRAMANIAN, J. S. WILKINSON et B. S. AHLUWALIA : « Surface transport and stable trapping of particles and cells by an optical waveguide loop ». *Lab Chip* (2012), t. 12 : p. 3436 (cf. p. 21, 22).

- [35] O. I. HELLE, B. S. AHLUWALIA et O. G. HELLESO : « Optical transport, lifting and trapping of micro-particles by planar waveguides ». *Opt. Express* (2015), t. 23 : p. 6601 (cf. p. 21, 22).
- [36] Y. G. SONG, B. M. HAN et S. CHANG : « Force of surface plasmon-coupled evanescent fields on Mie particles ». *Opt. Commun.* (2001), t. 198 : p. 7 (cf. p. 22).
- [37] G. VOLPE, R. GUIDANT, G. BADENES et D. PETROV : « Surface plasmon radiation forces ». *Phys. Rev. Lett.* (2006), t. 96 : p. 238101 (cf. p. 22).
- [38] V. GARCES-CHAVEZ, R. QUIDANT, P. J. REECE, G. BADENES, L. TORNER et K. DHOLAKIA : « Extended organization of colloidal microparticles by surface plasmon polariton excitation ». *Phys. Rev. B* (2006), t. 73 : p. 085417 (cf. p. 22, 128).
- [39] K. WANG, E. SCHONBRUN, P. STEINVURZEL et K. B. CROZIER : « Scannable Plasmonic Trapping Using a Gold Stripe ». *Nano Lett.* (2010), t. 10 : p. 3506 (cf. p. 22).
- [40] M. RIGHINI, A. S. ZELENINA, C. GIRARD et R. QUIDANT : « Parallel and selective trapping in a patterned plasmonic landscape ». *Nature Phys.* (2007), t. 3 : p. 477 (cf. p. 22).
- [41] W. ZHANG, L. LINA HUANG, C. SANTSCI et O. J. F. MARTIN : « Trapping and Sensing 10 nm Metal Nanoparticles Using Plasmonic Dipole Antennas ». *Nano Lett.* (2010), t. 10 : p. 1006 (cf. p. 22).
- [42] Y. TANAKA, S. KANEDA et K. SASAKI : « Nanostructured Potential of optical trapping using a plasmonic nanoblock pair ». *Nano Lett.* (2013), t. 13 : p. 2146 (cf. p. 22).
- [43] M. L. JUAN, R. GORDON, Y. PANG, F. EFTEKHARI et R. QUIDANT : « Self-induced back-action optical trapping of dielectric nanoparticles ». *Nature Phys.* (2009), t. : p. 1006 (cf. p. 23).
- [44] Y. PANG et R. GORDON : « Optical trapping of 12 nm dielectric spheres using double-nanoholes in a gold film ». *Nano Lett.* (2011), t. 11 : p. 3763 (cf. p. 24).
- [45] Y. PANG et R. GORDON : « Optical Trapping of a Single Protein ». *Nano Lett.* (2012), t. 12 : p. 402 (cf. p. 24).
- [46] L. NEUMANN, Y. PANG, A. HOUYOU, M. L. JUAN, R. GORDON et N. F. VAN HULST : « Extraordinary optical transmission brightens near-field fiber probe ». *Nano Lett.* (2011), t. 11 : p. 355 (cf. p. 24).

- [47] R. M. GELFAND, S. WHEATON et R. GORDON : « Cleaved fiber optic double nanohole optical tweezers for trapping nanoparticles ». *Opt. Lett.* (2014), t. 39 : p. 6415 (cf. p. 25).
- [48] J. BERTHELOT, S. S. AĆIMOVIĆ, M. L. JUAN, M. P. KREUZER, J. RENGER et R. QUIDANT : « Three-dimensional manipulation with scanning near-field optical nanotweezers ». *Nat. Nanotechnol.* (2014), t. 10 : p. 1038 (cf. p. 25).
- [49] A. EL ETER, N. M. HAMEED, F. I. BAIDA, R. SALUT, C. FILIATRE, D. NEDELJKOVIC, E. ATIE, S. BOLE et T. GROSJEAN : « Fiber-integrated optical nano-tweezer based on a bowtie-aperture nano-antenna at the apex of a SNOM tip ». *Opt. Express* (2014), t. 22 : p. 10072 (cf. p. 25).
- [50] C. RENAUT, J. DELLINGER, B. CLUZEL, T. HONEGGER, D. PEYRADE, E. PICARD, F. de FORNEL et E. HADJI : « Assembly of microparticles by optical trapping with a photonic crystal nanocavity ». *Appl. Phys. Lett.* (2012), t. 100 : p. 101103 (cf. p. 26).
- [51] C. PIN, B. CLUZEL, C. RENAUT, D. PEYRADE, E. PICARD, E. HADJI et F. de FORNEL : « Optofluidic taming of a colloidal dimer with a silicon nanocavity ». *Appl. Phys. Lett.* (2014), t. 105 : p. 171108 (cf. p. 26, 27).
- [52] K. TAGUCHI, K. ATSUTA, T. NAKATA et M. IKEDA : « Single laser beam fiber optic trap ». *Opt. Quantum Electron.* (2001), t. 33 : p. 99 (cf. p. 27).
- [53] R. S. TAYLOR et C. HNATOVSKY : « Particle trapping in 3-D using a single fiber probe with an annular light distribution ». *Opt. Express* (2003), t. 11 : p. 2775 (cf. p. 27, 28).
- [54] T. NUMATA, A. TAKAYANAGI, Y. OTANI et N. UMEDA : « Manipulation of Metal Nanoparticles using Fiber-Optic Laser Tweezers with a Microspherical Focusing Lens ». *J. J. Appl. Phys.* (2006), t. 45 : p. 359 (cf. p. 28).
- [55] Z. LIU, C. GUO, J. YANG et L. YUAN : « Tapered fiber optical tweezers for microscopic particle trapping : fabrication and application ». *Opt. Express* (2006), t. 14 : p. 12510 (cf. p. 28).
- [56] Hongbao XIN, Rui XU et Baojun LI : « Optical trapping, driving, and arrangement of particles using a tapered fibre probe ». *Sci. Rep.* (2012), t. 2 (cf. p. 28).
- [57] H. XIN, Y. LI, L. LI, R. XU et B. LI : « Optofluidic manipulation of Escherichia coli in a microfluidic channel using an abruptly tapered optical fiber ». *App. Phys. Lett.* (2013), t. 103 : p. 033703 (cf. p. 28).
- [58] Z. LIU, L. WANG, P. LIANG, Y. ZHANG, J. YANG et L. YUAN : « Mode division multiplexing technology for single-fiber optical trapping axial-position adjustment ». *Opt. Lett.* (2013), t. 38 : p. 2617 (cf. p. 28, 29).

- [59] L. YUAN, Z. LIU, J. YANG et C. GUAN : « Twin-core fiber optical tweezers ». *Opt. Express* (2008), t. 16 : p. 4559 (cf. p. 28).
- [60] Y. GONG, A. Y. YE, Y WU, Y. J. RAO, Y. YAO et S. XIAO : « Graded-index fiber tip optical tweezers : Numerical simulation and trapping experiment ». *Opt. Express* (2013), t. 21 : p. 16181 (cf. p. 28).
- [61] S. K. MONDAL, S. S. PAL et P. KAPUR : « Optical fiber nano-tip and 3D bottle beam as non-plasmonic optical tweezers ». *Opt. Express* (2012), t. 20 : p. 16180 (cf. p. 28, 84).
- [62] Y. LIU, F. STIEF et M. YU : « Subwavelength optical trapping with a fiber-based surface plasmonic lens ». *Opt. Lett.* (2013), t. 38 : p. 721 (cf. p. 29).
- [63] A. CONSTABLE, J. KIM, J. MERVIS, F. ZARINETCHI et M. PRENTISS : « Demonstration of a fiber-optical light-force trap ». *Opt. Lett.* (1993), t. 18 : p. 1867 (cf. p. 30).
- [64] E. R. LYONS et G. J. SONEK : « Confinement and bistability in a tapered hemispherically lensed optical fiber trap ». *Appl. Phys. Lett.* (1995), t. 66(13) : p. 1584 (cf. p. 30, 67).
- [65] W. SINGER, M. FRICK, S. BERNET et M. RITSCH-MARTE : « Self-organized array of regularly spaced microbeads in a fiber-optical trap ». *J. Opt. Soc. Am. B* (2003), t. 20 : p. 1568 (cf. p. 30, 68, 91).
- [66] Y. LIU et M. YU : « Multiple traps created with an inclined dual-fiber system ». *Opt. Express* (2009), t. 17 : p. 21680 (cf. p. 30).
- [67] M. M. BURNS, J.-M. FOURNIER et J. A. GOLOVCHENKO : « Optical binding ». *Phys. Rev. Lett.* (1989), t. 63 : p. 1233 (cf. p. 30, 68).
- [68] Sándor VALKAI, László OROSI et Pál ORMOS : « Optical tweezers with tips grown at the end of fibers by photopolymerization ». *Appl. Opt.* (2009), t. 48 : p. 2880 (cf. p. 31).
- [69] J. B. BLACK, D. LUO et S. K. MOHANTY : « Fiber-optic rotation of micro-scale structures enabled microfluidic actuation and self-scanning two-photon excitation ». *Appl. Phys. Lett.* (2012), t. 101 : p. 221105 (cf. p. 31).
- [70] X. XU, C. CHENG, H. XIN, H. LEI et B. LI : « Controllable orientation of single silver nanowire using two fiber probes ». *Sci. Rep.* (2014), t. 4 : p. 3989 (cf. p. 31, 32).
- [71] J. B. DECOMBE, J. F. BRYCHE, J. F. MOTTE, J. CHEVRIER, S. HUANT et J. FICK : « Transmission and reflection characteristics of metal-coated optical fiber tip pairs ». *Appl. Opt.* (Sept. 2013), t. 52 : p. 6620 (cf. p. 33, 133).
- [72] L. F. ZANINI : « Bio-Mag-MEMS autonomes basés sur des aimants permanents ». Thèse de doct. EEATS, 2013 (cf. p. 47).

- [73] N. CHEVALIER, Y. SONNEFRAUD, J. F. MOTTE, S. HUANT et K. KARRAI : « Aperture-size-controlled optical fiber tips for high-resolution optical microscopy ». *Rev. Sci. Instrum.* (2006), t. 77 : p. 063704 (cf. p. 49, 129, 130, 132).
- [74] J. B. DECOMBE, W. SCHWARTZ, C. VILLARD, H. GUILLOU, J. CHEVRIER, S. HUANT et J. FICK : « Living cell imaging by far-field fibered interference scanning optical microscopy ». *Opt. Express* (2011), t. 19 : p. 2702 (cf. p. 49).
- [75] E. BETZIG, J. K. TRAUTMAN, T. D. HARRIS, J. S. WEINER et R. L. KOSTELAK : « Breaking the Diffraction Barrier : Optical Microscopy on a Nanometric Scale ». *Science* (1991), t. 251 : p. 1468 (cf. p. 50).
- [76] R. STOCKLE, C. FOKAS, V. DECKERT, R. ZENOBI, B. SICK, B. HECHT et U. P. WILD : « High-quality near-field optical probes by tube etching ». *App. Phys. Lett.* (1999), t. 75 : p. 160 (cf. p. 50, 51).
- [77] Y. K. CHEONG, K. S. LIM, W. H. LIM, W. Y. CHONG, R. ZAKARIA et H. AHMAD : « Note : Fabrication of tapered fibre tip using mechanical polishing method ». *Rev. Sci. Instrum.* (2011), t. 82 : p. 086115 (cf. p. 50).
- [78] R. BACHELOT, A. FARES, R. FIKRI, D. BARCHIESI, G. LERONDEL et P. ROYER : « Coupling semiconductor lasers into single-mode optical fibers by use of tips grown by photopolymerization ». *Opt. Lett.* (2004), t. 29 : p. 1971 (cf. p. 50).
- [79] A. CUCHE : « Sondes actives pour l'optique en champ proche a base de nanoparticules isolantes ou de nanodiamants fluorescents ». Thèse de doct. Université Joseph Fourier Grenoble, 2009 (cf. p. 52).
- [80] K. BERG-SØRENSEN et H. FLYVBERG : « Power spectrum analysis for optical tweezers ». *Rev. Sci. Instrum.* (2004), t. 75 : p. 594 (cf. p. 61).
- [81] J. BECHLOEFER et S. WILSON : « Faster, cheaper, safer optical tweezers for the undergraduate laboratory ». *Am. J. Phys.* (2002), t. 70 : p. 393 (cf. p. 62).
- [82] R. ROUANE : « Piégeage optique avec des pinces fibrées ». Mém.de mast. Université de Lorraine, 2015 (cf. p. 68).
- [83] M. GUILLON : *Conception et intégration d'un système micro-fluidique dans une pince optique fibrée*. Rapp. tech. IUT1 Grenoble-Mesures Physiques, 2015 (cf. p. 68).
- [84] G. LABEYE : *Réalisation et caractérisation d'une cellule micro-fluidique en vue d'un piégeage optique*. Rapp. tech. IUT1 Grenoble-Mesures Physiques, 2014 (cf. p. 68).

- [85] A. ZEHTABI-OSKUIE, J. G. BERGERON et R. GORDON : « Flow-dependent double-nanohole optical trapping of 20 nm polystyrene nanospheres ». *Sci. Rep.* (2012), t. 2 : p. 966 (cf. p. 82).
- [86] S. SARKAR PAL, S. MONDAL, D. KUMBHAKAR, K. KUMAR, A. AKULA, R. GHOSH et R. BHATNAGAR : « Optical fiber antenna generating spiral beam shapes ». *Appl. Phys. Lett.* (2014), t. 104 : p. 031105 (cf. p. 84).
- [87] J.B. DECOMBE, S. K. MONDAL, D. KUMBHAKAR, S. S. PAL et J. FICK : « Single and Multiple Microparticle Trapping Using Non-Gaussian Beams From Optical Fiber Nanoantennas ». *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron* (2015), t. 21 : p. 4500106 (cf. p. 84, 89).
- [88] J. DURININ : « Exact solutions for nondiffracting beams. i. the scalar theory ». *J. Opt. Soc. Am. A* (1987), t. 4 : p. 651 (cf. p. 84).
- [89] A. FAHYS : « Micro et nano-antennes adaptées à la microscopie champ proche et à l'imagerie haute résolution ». Thèse de doct. Université de Franche Comté, 2007 (cf. p. 85).
- [90] S. K. MONDAL, A. ANUPAM MITRA, N. NAHAR SINGH, S. N. SARKAR et P. KAPUR : « Optical fiber nanoprobe preparation for near-field optical microscopy by chemical etching under surface tension and capillary action ». *Opt. Exp.* (2009), t. 17 : p. 19470 (cf. p. 85).
- [91] S. K. MONDAL, A. MITRA, N. SINGH, F. SHI et P. KAPUR : « Ultrafine Fiber Tip Etched in Hydrophobic Polymer Coated Tube for Near-Field Scanning Plasmonic Probe ». *IEEE Phot. Technol. Lett.* (2011), t. 23 : p. 1382 (cf. p. 85, 86).
- [92] R. ZHU : « Nanoparticle characterization using an original fibre tips nano-tweezers ». Mém.de mast. INSA Lyon, 2015 (cf. p. 94).
- [93] G. DANTELLE, B. FLEURY, J. P. BOILOT et T. GACOIN : « How to prepare the brightest luminescent coatings? » *ACS Appl. Mater. Interfaces* (2013), t. 5 : p. 11315 (cf. p. 96).
- [94] M. INOUE, H. OTSU, H. KOMINAMI et T. INUI : « Glycothermal synthesis of rare earth aluminium garnets ». *J. Alloys Compd.* (1995), t. 226 : p. 146 (cf. p. 96).
- [95] R. KASUYA, T. ISOBE et H. KUMA : « Glycothermal synthesis and photoluminescence of YAG :Ce³⁺ nanophosphors ». *J. Alloys Compd.* (2006), t. 408-12 : p. 820 (cf. p. 96).
- [96] A. REVAUX : « Gestion de la lumière dans des couches luminescentes nanostructurées : application aux diodes blanches ». Thèse de doct. Ecole Polytechnique, 2011 (cf. p. 96, 97, 104).

- [97] G. DANTELLE : « Communication privée » (cf. p. 96).
- [98] A. REVAUX, G. DANTELLE, N. GEORGE, R. SESHADRI, T. GACOIN et J. P. BOILOT : « A protected annealing strategy to enhanced light emission and photostability of YAG :Ce nanoparticle-based films ». *Nanoscale* (2011), t. 3 : p. 2015 (cf. p. 97).
- [99] G. MIALON, M. GOHIN, T. GACOIN et J.-P. BOILOT : « High Temperature Strategy for Oxide Nanoparticle Synthesis ». *ACS Nano* (2008), t. 2 : p. 2505 (cf. p. 97).
- [100] J.B. DECOMBE, G. DANTELLE, T. GACOIN, F. J. VALDIVIA-VALERO, G. COLAS DES FRANCS, S. HUANT et J. FICK : « Micro- and nano-particle trapping using fibered opticalnano-tweezers ». *Proc. of SPIE* (2014), t. 9164 : p. 916430 (cf. p. 117).
- [101] F. WANG, Y. HAN, C. S. LIM, Y. LU, J. WANG, J. XU, H. CHEN, C. ZHANG, M. HONG et X. LIU : « Simultaneous phase and size control of upconversion nanocrystals through lanthanide doping ». *Nature* (2010), t. 463 : p. 1061 (cf. p. 120).
- [102] G. MIALON : « Monocristaux YV04 :Ln à l'échelle nanométrique : Mécanismes de fluorescence et "upconversion" ». Thèse de doct. Ecole Polytechnique, 2009 (cf. p. 121).
- [103] M. THIRIET : « Communication privée » (cf. p. 122).
- [104] J.-F. BRYCHE : « Etude du couplage de pointes optiques : rôle du champ proche ». Mém.de mast. Université Paris Sud, 2012 (cf. p. 127).
- [105] D. BRAUN et A. LIBCHABER : « Trapping of DNA by thermophoretic depletion and convection ». *Phys. Rev. Lett.* (2002), t. 89 : p. 188103 (cf. p. 128).
- [106] N. CHEVALIER, M. J. NASSE, J. C. WOEHLE, P. REISS, J. BLEUSE, F. CHANDEZON et S. HUANT : « CdSe single-nanoparticle based active tips for near-field optical microscopy ». *Nanotechnology* (2005), t. 16 (cf. p. 129).
- [107] N. CHEVALIER : « Sondes actives à base d'un nanocristal semiconducteur unique pour l'optique en champ proche : concept et réalisation ». Thèse de doct. Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2005 (cf. p. 129).
- [108] J. D. JACKSON : « Classical Electrodynamics, 3rd Edition ». Wiley, 1998. Chap. 9.2 (cf. p. 138).
- [109] L. NOVOTNY et B. HECHT : « Principles of nano-optics ». Cambridge University Press, 2006. Chap. 10 (cf. p. 141).

-
- [110] P. RODRIGUEZ-SEVILLA, H. RODRIGUEZ-RODRIGUEZ, M. PEDRONI, A. SPEGHINI, M. BETTINELLI, J. GARCIA SOLÉ, D. JAQUE et P. HARO-GONZALEZ : « Assessing single upconverting nanoparticle luminescence by optical tweezers ». *Nano Lett.* (2015), t. 15 : p. 5068 (cf. p. 147).
- [111] M. BERTHEL, O. MOLLET, G. DANTELLE, T. GACOIN, S. HUANT et A. DREZET : « Photophysics of single nitrogen-vacancy centers in diamond nanocrystals ». *Phys. Rev. B* (2015), t. 91 : p. 035308 (cf. p. 147).
- [112] M. D. SUMMERS, D. R. BURNHAM et D. MCGLOIN : « Trapping solid aerosols with optical tweezers : a comparison between gas and liquid phase optical traps ». *Opt. Express* (2008), t. 16 : p. 7739 (cf. p. 147).
- [113] R. OMORI, T. KOBAYASHI et A. SUZUKI : « Observation of a single-beam gradient-force optical trap for dielectric particles in air ». *Opt. Lett.* (1997), t. 22 : p. 816 (cf. p. 147).

ANNEXE A

Synthèse de particules de YAG:Ce³⁺ par réaction solide

Le protocole de synthèse de particules de YAG:Ce³⁺ par réaction solide à très haute température est détaillé dans cette annexe.

Nous obtenons un gramme de poudre de YAG : 2%Ce³⁺ à partir du mélange de :

- 0,556 g d'Y₂O₃
- 0,427 g d'Al₂O₃
- 17 mg de CeO₂
- 50 mg de BaF₂
- 5 mg de NH₄F

les deux dernières poudres étant des fondants permettant de faciliter le mélange pendant le recuit. Le tout est chauffé à une température de 1550 °C avec des temps de recuit allant de 48 h à 115 h. Afin de réduire la taille des grains de YAG:Ce³⁺, la poudre obtenue est broyée dans du diéthylène glycol puis lavée et remise en suspension dans l'eau. Des images MEB sont présentées sur la Figure A.1. Nous constatons que les cristaux sont de taille micro-métrique très variables et de forme facettée aléatoire.

Des mesures utilisant la diffusion dynamique de la lumière (DDL) ont été réalisées afin de déterminer la taille des objets synthétisés : nous obtenons des tailles d'environ 950 nm.

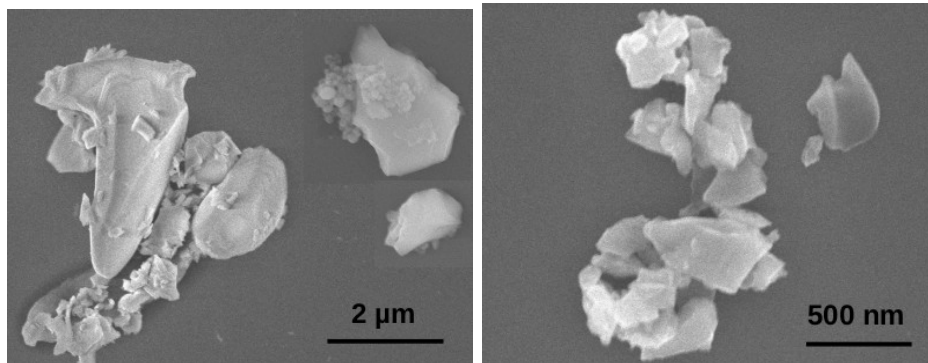


Figure A.1: Image MEB de particules de YAG:Ce³⁺ synthétisées par réaction solide à haute température.

Nous avons réalisé des synthèses avec différents temps de recuit et les poudres ont été caractérisées par diffraction des rayons X (Fig. A.2). On peut constater la présence de la phase recherchée (YAG) mais aussi de deux autres phases parasites non luminescente : le YAP (YAlO₃) et le YAM (Y₄Al₂O₉). Nous avons cherché à éliminer ces phases en augmentant le temps de recuit. Pour un recuit de 115 h, la phase YAM est éliminée mais le YAP est toujours présent.

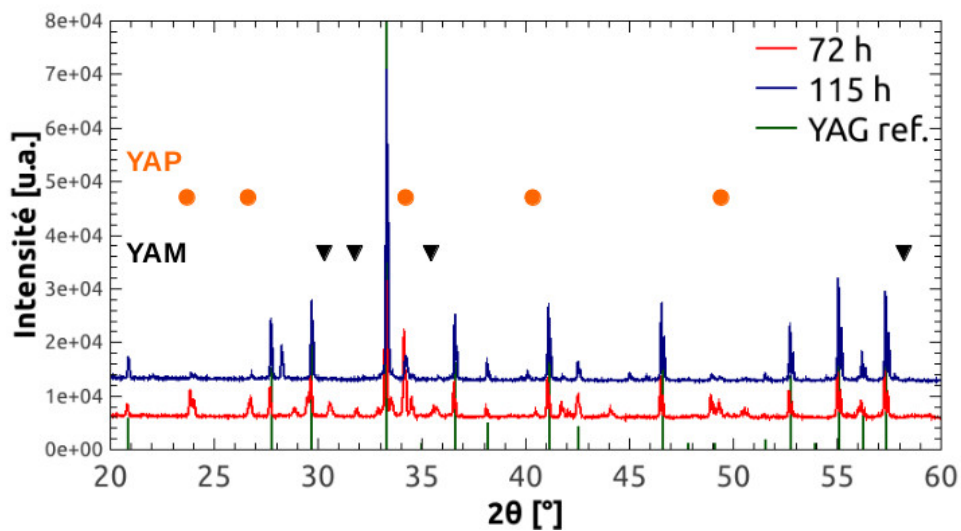


Figure A.2: Diagramme de diffraction rayons X de synthèses de YAG:Ce³⁺ avec des temps de recuit différents.

Les propriétés de luminescence des poudres sont présentées sur la Figure A.3. Nous retrouvons les spectres d'émission et d'excitation correspondant aux transitions d'énergie des ions Ce^{3+} : deux pics d'excitations à 340 and 450 nm associés respectivement aux transitions $4f \Rightarrow 5d(^2B_{1g})$ et $4f \Rightarrow 5d(^2A_{1g})$; un large pic d'émission dans le domaine du visible dû à la transition $5d \Rightarrow 4f$.

Afin de caractériser quantitativement la luminescence des particules, nous avons mesuré des rendements quantiques en sphère d'intégration. Nous obtenons un rendement d'environ 85 % ce qui est très satisfaisant.

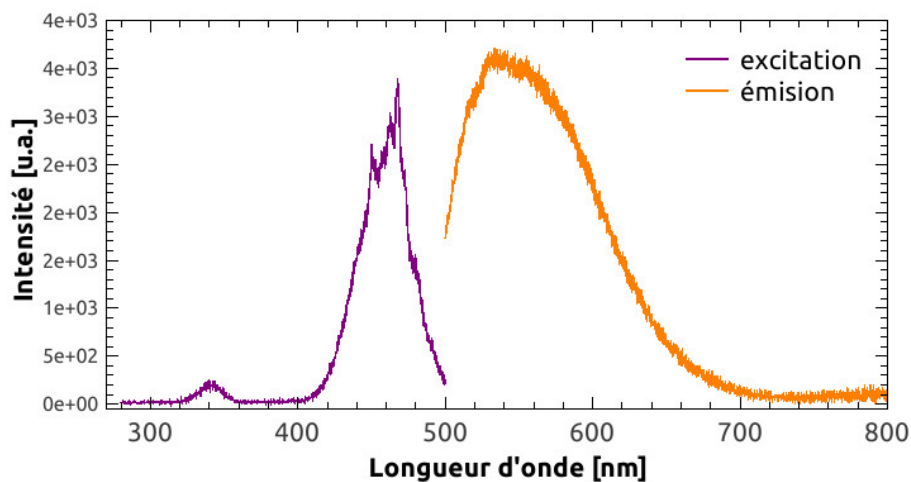


Figure A.3: Spectres d'absorption et d'émission des poudres de YAG synthétisées par réaction solide.

Enfin, nous avons réalisé des mesures de potentiel zêta afin de vérifier la stabilité des particules dans l'eau. Cette méthode mesure l'intensité de répulsion ou d'attraction électrostatique entre les particules. Le résultat n'est pas satisfaisant, ce qui n'est pas étonnant puisque nous voyons à l'œil que les particules tombent en une dizaine de minutes au fond du récipient pour sédimenter.

En conclusion de cette synthèse, nous obtenons des particules de $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ de forme aléatoire et d'une taille moyenne de l'ordre du micromètre. Nous notons également la présence d'une phase parasite que nous n'avons pas pu éliminer. Les propriétés de luminescence sont bonnes. Cependant, les particules ne sont pas du tout stables en solution ce qui est un réel problème pour les expériences de piégeage.

Publications et conférences

Publications scientifiques à comité de lecture

1. J.B. DECOMBE, S. MONDAL, D. KUMBHAKAR, S. SARKAR PAL, AND J. FICK, « Single and Multiple Microparticle Trapping Using Non-Gaussian Beams From Optical Fiber Nanoantennas ». *IEEE J. Sel. Top. Quant. Elec.*, 21, 4500106 (2015).
2. J.B. DECOMBE, S. HUANT, J. FICK, « Single and dual fiber nano-tip optical tweezers: trapping and analysis ». *Opt. Express*, 21, 30521 (2013).
3. J.B. DECOMBE, J.F. BRYCHE, J.F. MOTTE, J. CHEVRIER, S. HUANT, AND J. FICK, « Transmission and reflection characteristics of metal-coated optical fiber tip pairs ». *Appl. Opt.*, 52, 6620 (2013).

Conférences internationales

1. J.B. DECOMBE, G. DANTELLE, T. GACOIN, F.J. VALDIVIA-VALERO, G. COLAS DES FRANCS, S. HUANT, AND J. FICK, « Micro- and nano-particle trapping using fibered optical nano-tweezers ». *Proc SPIE*, 9164 (2014).
2. J.B. DECOMBE, S. HUANT, AND J. FICK, « Optical trapping of microparticles using bare fiber nano-tips ». *Proc SPIE*, 9126 (2014).

Conférences nationales

1. J.B. DECOMBE, G. DANTELLE, T. GACOIN, S. HUANT, AND J. FICK, « Nano-pinces optiques fibrées pour le piégeage de micro et nano-particules ». *Forum des microscopies à sonde locale*, 2014.

2. J.B. DECOMBE, J.F. MOTTE, S. HUANT AND J. FICK, « Fibered nano-optical tweezers: optical characterization and first trapping results ». *Summer school on plasmonics 3*, 2013.

Résumé

Les pinces optiques permettent de piéger et de manipuler des objets sans contact physique avec de la lumière et ce avec une extrême précision. Son caractère non-invasif et non-destructif en fait un outil idéal pour des applications dans des domaines tels que la biophysique et la médecine. La pince optique conventionnelle utilise un faisceau lumineux fortement focalisé par un objectif de microscope.

La fibre optique est un composant très intéressant dans ce domaine puisqu'elle permet de guider la lumière et de piéger optiquement des objets sans l'utilisation de composants optiques encombrants et en limitant des étapes d'alignement. Elle donne ainsi une grande flexibilité et compacité aux pinces optiques.

Dans ce contexte, l'objectif de cette thèse a été de développer une pince optique à deux fibres nano-structurées dans le but de piéger des particules de taille micro et nanométrique. Notre pince est constituée de deux fibres optiques gravées chimiquement en forme de pointe et positionnées en vis-à-vis à des distances typiques de 20 nm à 20 μm . Cette configuration à deux faisceaux contra-propagatifs permet d'annuler la pression de radiation de la lumière. Elle a l'avantage d'obtenir un piégeage efficace pour des intensités lumineuses relativement faibles. En outre, les faisceaux ne doivent pas nécessairement être fortement focalisés. Notre dispositif présente une grande souplesse grâce au contrôle in-situ de la position des fibres, l'injection de la lumière dans les fibres et la manipulation de particules individuelles sans aucun substrat.

Au cours de ces travaux, nous avons démontré expérimentalement le piégeage stable et reproductible d'une ou plusieurs particules en suspension. Divers types de particules diélectriques ont été piégées, allant de la particule en polystyrène d'un micromètre à des particules luminescentes de YAG:Ce³⁺ mesurant 60 nm de diamètre. Ces dernières ont été élaborées et optimisées spécifiquement pour le piégeage optique lors de ces travaux. Nous avons également mesuré les forces optiques appliquées aux particules piégées en analysant leur mouvement Brownien résiduel. Nous avons démontré que le potentiel de piégeage était harmonique, nous permettant de définir la constante de raideur optique.

Enfin nous avons démontré qu'en modifiant la forme du faisceau optique d'émission, il était possible d'améliorer certaines caractéristiques de la pince. D'une part, les faisceaux quasi-Bessel qui sont très peu divergents nous ont permis de réaliser un piégeage stable et efficace à grande distance.

D'autre part, l'utilisation de pointes métallisées permet de confiner le champ et d'améliorer les forces optiques tout en diminuant l'intensité lumineuse. Nous avons mis en évidence le couplage en champ proche entre deux pointes métallisées qui ont été spécialement élaborées pour la pince. Ces derniers résultats ouvrent des perspectives encourageantes pour le développement d'une pince plasmonique fonctionnant en champ proche qui est particulièrement bien adaptée pour le piégeage de nanoparticules.

Mots clés : Pince optique, fibre optique, nanoparticule luminescente, nano-optique, force optique

Abstract

Optical tweezers allow to trap and manipulate objects without any mechanical contact with light and with an extreme accuracy. This non-invasive and non-destructive technique is of large interest in many scientific domains such as biophysics and medicine. Conventional optical tweezers use a laser beam which is strongly focalised by a microscope objective.

The use of optical fibers attracts increasing attention as highly flexible and compact tools for particle trapping. Fiber-based optical tweezers do not require bulky optics and require only little alignments.

In this context, the objective of this thesis was to develop a dual fiber nano-tip optical tweezers in order to trap particles with micro and nano-meter sizes. Our tweezers consist of two chemically etched optical fiber tips placed in front of each other with typical gaps from 20 nm to 20 μm . This dual contra-propagative beams configuration allow to cancel light radiation pressure. Efficient trapping can thus be obtained at relative low light intensities. Moreover, strong focusing is not required. Our device present an high flexibility due to in situ optimization and control of the fibre positions and individual particle manipulation without any substrate.

During our work, we experimentally demonstrated stable and reproducible trapping of one or several particles in suspension. Various dielectric particles were trapped, from one micrometer polystyrene beads to luminescent YAG:Ce³⁺ particles with diameters down to 60 nm. During this thesis, the latter were specifically elaborated and optimized for the optical trapping. We also measured optical forces applied to trapped particles by analyzing their residual Brownian motion. We showed the trapping potential is of harmonic shape, allowing to define its optical stiffness.

Finally, by modifying the emitted optical beam shape, we were able to improve specific tweezers characteristics. On one hand, nondiffracting quasi-Bessel beams allow us to get a stable trapping at large fiber-to-fiber distances.

On the other hand, the use of metallised fiber tips allows to improve the beam confinement and enhance optical forces while reducing light intensity. We proved the near-field coupling between two metallised tips which were especially elaborated in this work. Those last results open promising perspectives for the development of plasmonic tweezers working in the near-field, which are especially well adapted for nano-particles trapping.

Key words : optical tweezers, optical fiber, luminescent nanoparticle, nano-optics, optical force