



HAL
open science

Manipulation et déformation optiques d'interfaces molles

Antoine Girot

► **To cite this version:**

Antoine Girot. Manipulation et déformation optiques d'interfaces molles. Matière Molle [cond-mat.soft]. Université de Bordeaux, 2018. Français. NNT : 2018BORD0393 . tel-01992939

HAL Id: tel-01992939

<https://theses.hal.science/tel-01992939>

Submitted on 24 Jan 2019

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 PRÉSENTÉE
POUR OBTENIR LE GRADE DE
DOCTEUR DE
L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR
SPÉCIALITÉ LASERS, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

Par Antoine GIROT

**MANIPULATION ET DÉFORMATION OPTIQUES
D'INTERFACES MOLLES**

Sous la direction de Jean-Pierre DELVILLE et Ulysse DELABRE

Soutenue le 05 décembre 2018

Membres du jury :

M. Jean-Christophe BARET	Professeur à l'Université de Bordeaux	Président
M. José BICO	Maître de Conférences à l'ESPCI	Rapporteur
M. Pierre LAMBERT	Professeur à l'École Polytechnique de Bruxelles	Rapporteur
M. Régis WUNENBURGER	Professeur à l'UPMC	Examineur
M. Jean-Pierre DELVILLE	Directeur de Recherche au CNRS	Directeur de thèse
M. Ulysse DELABRE	Maître de Conférences à l'Université de Bordeaux	Co-directeur de thèse

Remerciements

Le travail présenté dans ce manuscrit représente trois années de thèse effectuées au Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine, deux montages expérimentaux différents, un déménagement vers de nouveaux locaux et surtout beaucoup de belles rencontres. Je voudrais donc témoigner toute ma gratitude à l'égard de celles et ceux qui m'ont entouré et soutenu durant cette période.

Tout d'abord, je remercie très sincèrement Jean-Pierre Delville et Ulysse Delabre pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et pour leur encadrement remarquable durant ces trois années. Ils ont toujours su rester à l'écoute et être présents dans les moments de doute, tout en me laissant une certaine liberté dans mon travail. Leur constante bonne humeur, leur optimisme ainsi que leurs encouragements m'ont vraiment permis de m'épanouir durant cette thèse. Ce fut un véritable plaisir de travailler à leurs côtés et j'ai beaucoup appris grâce à eux, aussi bien scientifiquement qu'humainement. J'en profite pour remercier le reste de l'équipe *Optofluidique* : Hamza Chraïbi (troisième permanent de l'équipe), et les non-permanents Raphaël, Hugo, Nicolas, Qingguo et Gopal. Bon courage à tous pour la suite !

Je tiens aussi à remercier José Bico et Pierre Lambert d'avoir accepté la lourde tâche d'être rapporteurs de mon manuscrit. Je remercie également Jean-Christophe Baret et Régis Wunenburger d'avoir bien voulu être membres de mon jury de thèse.

Je remercie également Thomas Guérin pour le développement de la théorie analytique des cônes optiques, ainsi que Jean-Baptiste Salmon pour m'avoir initié à l'art de la photolithographie souple et Jacques Leng pour ses conseils concernant la microfluidique. Leur aide respective aura été très précieuse dans les différents aspects de cette thèse.

Je tiens également à adresser mes remerciements aux différents services du laboratoire que j'ai pu solliciter tout au long de ces trois ans et qui ont assuré le bon déroulement de cette thèse. Je remercie donc le service gestion, électronique, mécanique (merci Sandra pour ta sympathie et bonne continuation dans ton nouveau labo), optique, informatique et enfin l'accueil assuré par Annie et Bernadette (merci pour ton aide lors de l'envoi des

manuscrits et pour la logistique de mon pot de thèse).

J'adresse un grand merci à l'ensemble des membres du laboratoire pour leur sympathie « lomienne ». J'ai pris beaucoup de plaisir à vous côtoyer et à travailler parmi vous pendant ces trois ans.

Une thèse ne se limite pas à trois années de travail acharné, c'est aussi trois années de belles rencontres. Je remercie donc tous les thésards et post-docs que j'ai rencontrés durant ma thèse : Gabriel, Amine (On en a gros!), Antonio, Artur, Quentin, Marion, Antoine, Olga, mes anciens collègues de bureau (David, Lukas puis Bacem), Mika, Mathilde, Matthieu, Goce... et tous les autres.

Durant ma thèse j'ai eu l'occasion d'enseigner à l'Université de Bordeaux ce qui fut une expérience très enrichissante. Je remercie donc tous ceux qui m'ont accompagné dans cette aventure, enseignants comme étudiants. Je remercie également les nombreux stagiaires que j'ai vu passer dans la salle de manipes pendant ces trois années et plus particulièrement Antoine Descamps-Duval pour ses mesures d'indices optiques dans les microémulsions (merci d'avoir fait le déplacement depuis Toulouse pour assister à ma soutenance), Henri Truong et son optimisme légendaire lors des débuts du double piège optique, Yusein Yusein qui a paramétré le contrôle par ordinateur du laser et enfin Renaud Larrieu pour son investissement dans les expériences de déformations optiques de vésicules. Ce fut un plaisir de vous encadrer durant vos stages et je vous souhaite bonne continuation pour vos études.

Je tiens à adresser un merci fraternel à mes amis : Romain, Quentin, Alex, Maxime et Corentin. J'ai vraiment passé trois années géniales grâce à vous. Nos sorties et nos brillants sujets de conversation du midi vont me manquer.

Enfin je voudrais adresser toute ma reconnaissance à ma famille qui a toujours été là pour me soutenir, dans les bons moments comme les plus difficiles, et je leur dédie cette thèse.

Table des matières

1	Introduction à la déformation d'interfaces molles	7
1.1	Contexte de l'étude	7
1.2	Déformation d'interfaces aux petites échelles	8
1.2.1	Manipulation optique	8
1.2.2	Excitation mécanique	9
1.3	Vers des déformations d'interfaces sans contact	11
1.3.1	Déformation par champ électrique	11
1.3.2	Déformation par champ acoustique	12
1.3.3	Déformation par champ optique	14
1.4	Plan du manuscrit	16
2	Pression de radiation optique induite par un faisceau laser	17
2.1	Historique	17
2.2	Pression de radiation optique exercée sur une interface	18
2.3	Équation d'équilibre mécanique de l'interface	23
3	Techniques expérimentales dédiées	27
3.1	Systèmes fluides de faible tension interfaciale	27
3.1.1	Microémulsions quasi-critiques	27
3.1.2	Équilibres de phases de Winsor	38
3.1.3	Récapitulatif des caractéristiques de nos échantillons	42
3.2	Montage expérimental de déformation d'interfaces planes	42
3.2.1	Montage et acquisitions	42
3.2.2	Caractérisation du faisceau	44
4	Détermination sans contact de très faibles tensions interfaciales	49
4.1	Déformation d'interfaces liquides sous faible excitation laser	49
4.1.1	Régime linéaire de déformation	49
4.1.2	Détermination sans contact de la tension interfaciale	53
4.2	Instabilité de l'interface	55
4.2.1	Description du phénomène	55
4.2.2	Caractérisation du seuil d'instabilité	58
4.3	Comparaison des différentes méthodes	64
4.3.1	Cas des systèmes quasi-critiques	64
4.3.2	Généralisation à tous les systèmes fluides utilisés	66
4.4	Conclusions	68

5	Cônes optiques	71
5.1	Physique des cônes de Taylor	71
5.2	Des cônes de Taylor aux cônes optiques	77
5.2.1	Mise en évidence des cônes optiques	77
5.2.2	Caractérisation expérimentale du demi-angle des cônes optiques	79
5.2.3	Origine physique des cônes optiques	81
5.3	Étude analytique des cônes optiques	83
5.3.1	Considérations théoriques	83
5.3.2	Confrontation avec l'expérience	86
5.4	Modélisation numérique	90
5.4.1	Principe	90
5.4.2	Influence de la gravité sur les déformations d'interfaces : comparaison avec le modèle analytique	93
5.4.3	Comparaison quantitative avec l'expérience	96
5.5	Vers une vision plus globale des cônes optiques	99
5.5.1	Influence de la divergence du faisceau	99
5.5.2	Effet des réflexions secondaires sur le cône optique	102
5.5.3	Influence de la force diffusives	109
5.6	Effets liés aux cônes optiques	110
5.7	Conclusions et perspectives	116
6	Développement d'un double piège optique fibré	119
6.1	Montage expérimental	120
6.1.1	Dispositif optique	121
6.1.2	Dispositif microfluidique sur puce	124
6.1.3	Dispositif microfluidique avec capillaire	126
6.1.4	Propagation du faisceau laser	129
6.2	Contraintes et forces optiques exercées dans un double piège optique	132
6.2.1	Contraintes optiques induites par un faisceau laser divergent	133
6.2.2	Contraintes optiques induites par deux faisceaux laser divergents	137
6.3	Calibration du double piège	139
7	Piégeage et déformation d'objets uniques dans un double piège optique	143
7.1	Choix du système expérimental	143
7.1.1	Gouttes de très faible tension interfaciale	144
7.1.2	Vésicules unilamellaires géantes	146
7.1.3	Préparation de notre système fluide	147
7.2	Effet du chauffage sur la déformation de vésicules	148
7.3	Déformation de vésicules sous faible excitation laser	150
7.3.1	Régime linéaire de déformation	150
7.3.2	Description théorique de la déformation optique	153
7.3.3	Application à la détermination de propriétés mécaniques	158
7.4	Déformation de vésicules sous forte excitation laser	162
7.5	Conclusions	165
8	Conclusions et perspectives	167
A	Détermination des indices de réfraction dans des systèmes critiques	175

B	Détermination du contraste de masse volumique	179
C	Détermination de la tension interfaciale par brisure	181
D	Description analytique des déformations d'interfaces liquides sous forte excitation laser	185
E	Micro-fabrication par photolithographie souple	189

Chapitre 1

Introduction à la déformation d'interfaces molles

1.1 Contexte de l'étude

La caractérisation des propriétés mécaniques locales, notamment à l'échelle du micron, est un enjeu majeur aussi bien d'un point de vue fondamental qu'appliqué et demeure essentielle pour comprendre de nombreux phénomènes dynamiques en matière molle et en biophysique. Citons ici par exemple le cas de la dynamique de croissance de tumeurs cancéreuses, laquelle dépend des contraintes mécaniques extérieures et de la pression exercée par les cellules environnantes. De même, nous savons qu'une cellule doit être capable de se déformer, de migrer ou de se diviser. Tous ces processus physiologiques impliquent alors une modification profonde de la mécanique de la cellule, notamment au niveau de sa membrane.

Il est alors crucial de comprendre comment les interfaces molles se déforment, notamment aux petites échelles, et d'appréhender leur rhéologie.

À l'échelle macroscopique il existe diverses techniques, basées sur l'étude de la déformation sous l'action d'une contrainte, pour caractériser les propriétés des interfaces : rhéomètre appliquant un cisaillement, déformation d'une goutte pendante, traction sur une lame de Wilhelmy...

La détermination des propriétés des interfaces à petite échelle est alors extrêmement difficile car la plupart de ces méthodes utilisent le contact et ne peuvent pas être mises en œuvre *in situ*. Dans le cas de la mesure de la tension interfaciale par exemple, ce contact avec l'interface est généralement assuré par une lame solide ou un anneau. Il est donc, de plus, très difficile de mesurer une faible tension interfaciale avec ce type de méthodes car celle-ci est déduite de la force nécessaire pour abaisser la lame. Par conséquent, plus la tension interfaciale est faible et moins la mesure est précise.

Ainsi, bien qu'il existe de nombreuses méthodes fiables pour la caractérisation des interfaces à grande échelle, la plupart d'entre elles ne parviennent pas à caractériser les interfaces de petite taille, d'autant plus quand celles-ci sont très molles. Ces méthodes ne permettent donc pas de capturer la complexité des interfaces à l'échelle locale.

1.2 Déformation d'interfaces aux petites échelles

Afin de pouvoir appréhender la rhéologie des fluides à petite échelle, de nouvelles stratégies ont alors été développées pour surmonter les limitations des méthodes macroscopiques. Ces solutions innovantes consistent alors en l'étude de la déformation d'une interface, ce qui peut se faire par différents procédés.

1.2.1 Manipulation optique

Le plus souvent, les déformations de l'interface se font par l'intermédiaire d'une ou plusieurs billes, collées sur celle-ci, et que l'on vient manipuler par diverses techniques. Une des techniques les plus employées pour la manipulation de ces billes fait appel aux outils optiques. En effet, dix ans après le développement de la première source laser, Ashkin fut le premier à mettre en évidence expérimentalement l'action mécanique de la lumière sur le mouvement de particules [1] ce qui lui permit de démontrer la possibilité de manipuler des objets par laser [2, 3, 4, 5]. La contribution majeure d'Ashkin dans le domaine de la manipulation et du piégeage optique a d'ailleurs été récompensée par le prix Nobel de physique en 2018.

Dans ce contexte, les outils optiques ont très largement été utilisés, notamment dans l'étude d'objets biologiques, puisqu'ils permettent de manipuler de manière simple les billes à l'échelle du micron. Parmi eux, la méthode la plus répandue est sans doute l'utilisation de pinces optiques, qui permettent alors de réaliser des mesures rhéologiques locales à l'échelle d'un objet unique. En manipulant une bille individuelle à l'intérieur d'un seul objet, tel qu'une cellule ou une vésicule, il est alors possible d'induire une déformation de l'interface de cet objet. Ashkin a d'ailleurs utilisé cette approche pour manipuler la structure interne d'une cellule (de taille micrométrique) et induire un filament au niveau de la membrane [6], comme nous le présentons sur la figure 1.1a. La connaissance de la force nécessaire à la formation de ce filament ou encore sa relaxation permettent alors de renseigner sur les propriétés mécaniques de la membrane cellulaire.

Il est également possible de manipuler une bille, collée à l'interface, à l'aide de pinces optiques pour induire une déformation globale de l'objet. Cette méthode a par exemple été utilisée pour manipuler et déformer des vésicules à l'aide d'une bille de latex adhérente

à la membrane de celles-ci [7, 8]. Il est également possible de manipuler une multitude de billes collées à l'interface de l'objet à l'aide de pièges optiques multiples, ce qui permet d'induire un changement de forme spécifique de l'interface. De tels dispositifs ont par exemple été utilisés pour la déformation de la membrane d'un globule rouge dans le but de déduire les propriétés élastiques (comme le module de cisaillement) de la relaxation de celle-ci [9] (voir figure 1.1b). Des difficultés liées au collage des billes sur les objets ainsi que la complexité du contrôle des positions de ces pinces optiques multiples, qui dépend de la géométrie de l'objet, limitent l'utilisation de ces techniques.

Cependant, compte tenu de la possibilité d'activer de manière externe la rotation des billes, le procédé a ensuite été étendu à l'emploi de billes anisotropes en tant que sondes locales actionnées à l'intérieur d'un objet fluide par des champs optiques [10], magnétiques [11, 12] ou électriques, notamment pour la mesure de propriétés visco-élastiques.

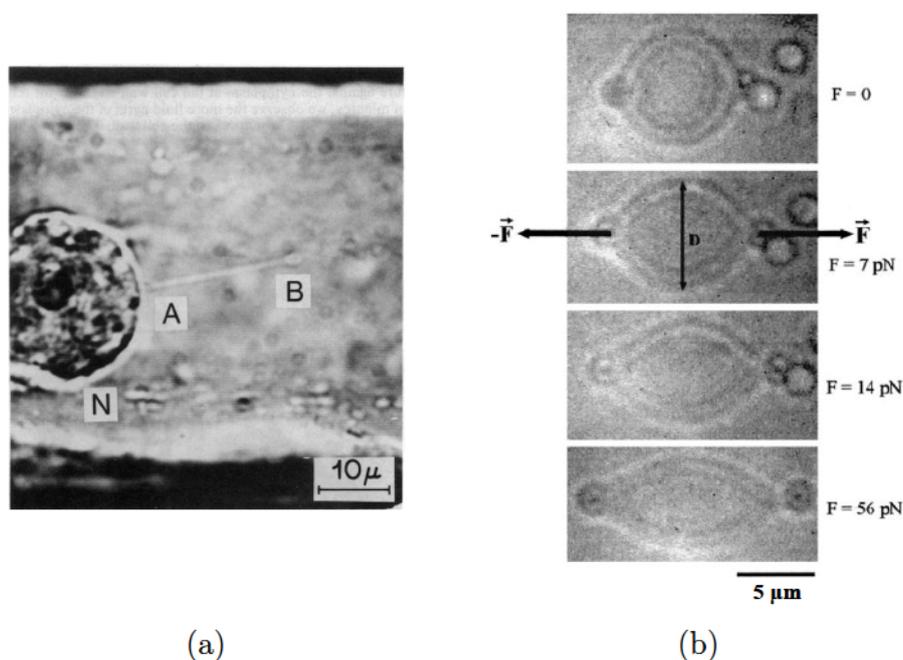


FIGURE 1.1 – (a) *Formation d'un filament sur la membrane d'une cellule. Le piège laser situé à l'origine à la surface du noyau (N) au point A est déplacé au point B. Issue de [6].* (b) *Déformation d'un globule rouge à l'aide de billes de silice collées sur la membrane et piégées par des pinces optiques. Issue de [9].*

1.2.2 Excitation mécanique

Outre la déformation par manipulation optique de billes, il est également possible d'utiliser la microscopie à force atomique (ou AFM) pour laquelle il s'agit d'étudier la déflexion d'un levier, muni d'une pointe très fine, qui interagit avec une bille collée sur

l'interface d'un objet à étudier [13]. Cette méthode offre alors une description locale avec une résolution nanométrique, mais des difficultés liées au contact des billes et à l'interaction avec l'interface persistent et rendent les mesures complexes. En raison de difficultés techniques dans le contrôle du collage, ajoutons qu'il est apparu des «AFM optiques» utilisant des billes piégées dans un faisceau [14].

Pour déformer un objet micrométrique de façon moins locale, il est possible d'induire une perturbation mécanique par compression ou traction de l'objet à l'aide d'une microplaque souple. Cette technique a été utilisée pour l'étude des propriétés mécaniques de cellules individuelles [15, 16]. Une microplaque rigide est alors utilisée pour maintenir la cellule, tandis qu'une autre, plus flexible, sert à la déformation (voir figure 1.2a). La déflexion de la microplaque souple est alors utilisée pour sonder des forces comprises entre 1 et 1000 nN. Les modules élastiques des cellules ont ainsi été estimés à 1000 Pa et leur viscosité apparente à 10^4 Pa.s.

Enfin, une des méthodes les plus utilisées pour l'étude des objets biologiques est l'aspiration par micropipette [17, 18, 19] qui permet de déterminer la tension de membrane des vésicules par exemple (de l'ordre du $\mu\text{N}/\text{m}$). Cette méthode a également été appliquée à la détermination de la tension interfaciale de gouttes micrométriques en étirant celles-ci à l'aide de deux micropipettes [20] (voir figure 1.2b). Cette méthode conduit alors à une résolution de 1 mN/m pour des gouttes "classiques" dont la tension interfaciale est de l'ordre de quelques dizaines de mN/m.

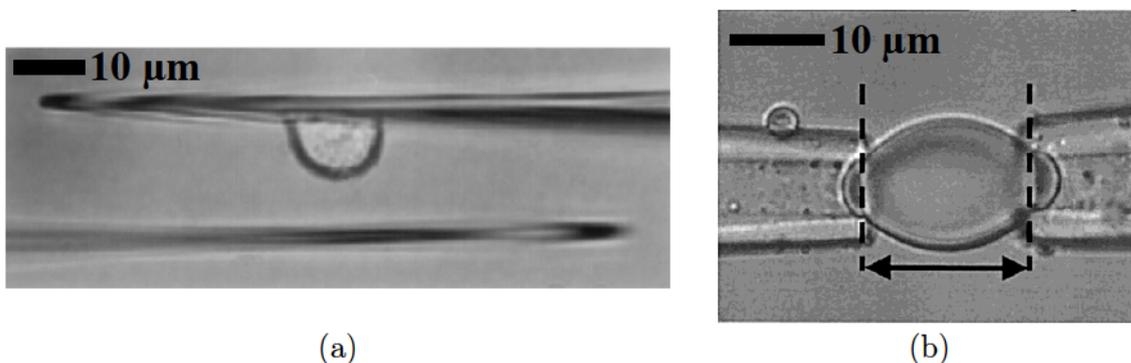


FIGURE 1.2 – (a) *Vue de côté d'une microplaque rigide portant un fibroblaste. Une autre microplaque plus souple va venir déformer l'objet. Issue de [16].* (b) *Déformation d'une goutte d'eau immergée dans du chloroforme par aspiration avec deux micropipettes. Issue de [20].*

L'une des limitations classiques de ces méthodes est liée au contact mécanique utilisé pour déformer une interface aux petites échelles. En effet, le contact favorise la pollution de l'interface, modifie sa structure locale et donc perturbe la mesure de ses propriétés mécaniques (d'autant plus lorsque cette interface est très déformable). Le contact peut même détériorer l'échantillon si celui-ci est suffisamment fragile. Afin de surmonter ces

difficultés, il devient alors nécessaire de pouvoir déformer des interfaces aux petites échelles en évitant tout contact.

1.3 Vers des déformations d'interfaces sans contact

La nécessité de déformer des interfaces de manière non-invasive a donc conduit à l'émergence de diverses techniques sans contact, qui sont désormais considérées comme des approches ultimes pour la détermination des propriétés mécaniques aux petites échelles. Parmi l'ensemble des techniques développées, celles basées sur l'analyse de la déformation d'une interface molle (goutte liquide, surface libre, vésicule...) sont extrêmement attractives puisqu'elles permettent de déduire les propriétés rhéologiques de l'analyse de l'évolution statique ou temporelle de la déformation de l'interface.

1.3.1 Déformation par champ électrique

Les premières observations de la déformation d'une interface fluide par un champ électrique ont été rapportées par William Gilbert, le médecin personnel de la reine Elizabeth, au tout début du 17^{ème} siècle [21]. Au siècle suivant, l'abbé Nollet s'intéressa à son tour aux interfaces électrisées et montra qu'un jet liquide se brisant en gouttelettes peut même être émis à partir de la déformation d'une interface liquide induite par un champ électrique [22].

Ces premières observations ont par la suite mené à de très nombreuses recherches sur l'électro-hydrodynamique des interfaces, notamment par Zeleny lors de ses travaux pionniers sur la déformation de gouttes sous champ [23, 24, 25, 26] ou encore par Taylor [27, 28, 29, 30, 31], pour ne citer qu'eux.



FIGURE 1.3 – Déformation sous champ électrique d'une goutte d'huile silicone en suspension dans de l'huile de ricin. Le champ électrique augmente de gauche à droite. Le rayon de la goutte non déformée est $R_0 = 0.6\text{mm}$. Issue de [32].

Dans de telles expériences, le champ électrique est induit par l'utilisation d'électrodes entre lesquelles une différence de potentiel élevée est appliquée. Ainsi lorsqu'une interface liquide est placée entre ces électrodes, comme une interface plane séparant deux liquides ou une goutte, celle-ci peut se déformer sous l'action de la pression électrique (voir figure

1.3). La forme adoptée par l'interface résulte alors d'un équilibre de cette pression électrique avec les pressions d'Archimède et de Laplace.

Ainsi en étudiant la réponse linéaire d'une interface excitée par un champ électrique, il est possible de caractériser celle-ci et d'en déduire certaines propriétés comme la tension interfaciale [33, 34]. Une telle méthode sans contact est donc particulièrement adaptée pour mesurer des faibles tensions. L'utilisation de champ électrique est donc très attrayante mais demeure cependant extrêmement sensible aux vibrations de l'échantillon. En effet la déformation électrique nécessite l'utilisation de champs très intenses et donc la proximité de l'interface avec les électrodes, ce qui peut entraîner un contact néfaste de l'échantillon avec celles-ci.

Ajoutons que lorsque les champs électriques sont suffisamment intenses et dépassent une valeur critique, l'interface déformée se déstabilise alors en une forme conique (communément appelée cône de Taylor) au niveau de laquelle un jet peut être émis (voir figure 1.4a-b). Ce phénomène a fait l'objet de très nombreuses études de par ses diverses applications. Nous aurons l'occasion de revenir sur ces déformations particulières d'interfaces induites électriquement au cours de ce manuscrit.

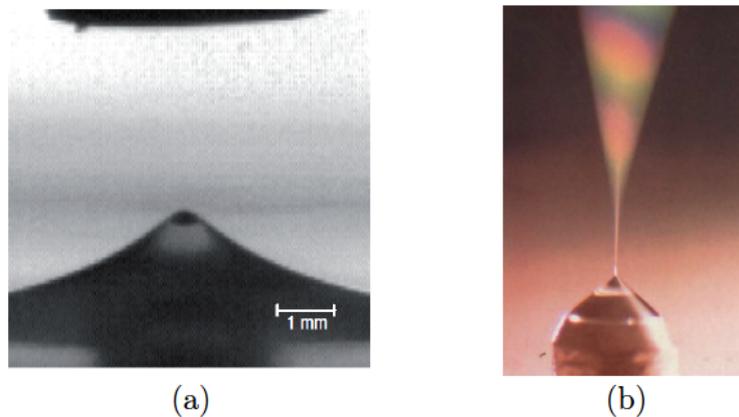


FIGURE 1.4 – (a) *Déformation conique d'un film d'huile induite sous champ électrique. Issue de [35].* (b) *Déformation conique d'une goutte de méthanol placée à l'extrémité d'une électrode avec émission d'un spray. Issue de [36].*

1.3.2 Déformation par champ acoustique

Historiquement, Rayleigh fut l'un des premiers à s'intéresser à la pression de radiation acoustique exercée par une onde sonore [37, 38]. Depuis ses travaux, de nombreuses études expérimentales ont alors été réalisées afin d'exploiter ce phénomène pour la déformation des interfaces. Ainsi, en irradiant une interface liquide-liquide par une onde acoustique

émise à l'aide d'un transducteur, il a été montré que celle-ci peut se déformer sous l'effet de la pression de radiation acoustique [39, 40] (voir figure 1.5).

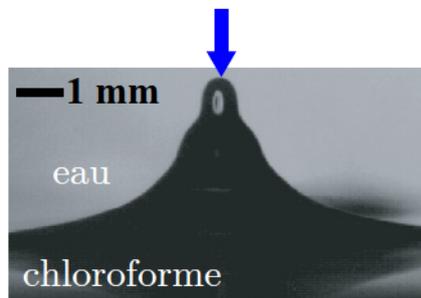


FIGURE 1.5 – *Déformation d'une interface liquide-liquide par pression de radiation acoustique. La flèche bleue indique le sens de propagation de l'onde sonore. Issue de [40].*

Depuis quelques décennies, les champs acoustiques ont été très employés pour la déformation d'interfaces liquides, notamment dans le but de générer des gouttelettes de taille contrôlée, ce qui reste un problème fondamental dans le cadre de l'impression par jet d'encre.

L'utilisation d'une onde acoustique a également été appliquée à la mesure de tensions interfaciales. Dans leurs travaux, Cinbis *et al.* ont montré qu'il était possible d'exciter les ondes capillaires à la surface libre d'un liquide. La détermination de l'amplitude et de la fréquence de passage de ces ondes permet alors de déduire des tensions superficielles de quelques dizaines de mN/m [41, 42]. Une approche similaire a été adoptée par Tian *et al.* pour exciter les modes de vibrations de gouttes suspendues dans l'air par lévitation acoustique, dans le but de déterminer les propriétés rhéologiques de ces gouttes [43].

Cette technique apparait donc particulièrement adaptée à la déformation d'interfaces à l'échelle micrométrique car elle ne nécessite aucune installation dédiée mais simplement une petite "fenêtre" pour le passage de l'onde incidente. Étant donné que la pression de radiation est inversement proportionnelle à la célérité de l'onde (comme nous le verrons par la suite), et que la vitesse du son est relativement faible, cette pression acoustique est donc assez efficace. Cependant la propagation du son dans un système multicouche est complexe en raison de l'adaptation d'impédance des différents milieux. De plus, les longueurs d'onde accessibles pour les champs acoustiques générés par des transducteurs ne permettent pas d'obtenir une focalisation satisfaisante du "faisceau" sonore dès qu'il devient nécessaire d'étudier la rhéologie locale à l'échelle du micromètre.

1.3.3 Déformation par champ optique

Les champs optiques constituent alors une alternative intéressante aux champs acoustiques puisqu'ils permettent d'atteindre des focalisations importantes.

Peu de temps après leurs travaux pionniers sur le piégeage optique et la manipulation d'objets par laser, Ashkin et Dziedzic ont ensuite démontré la possibilité de déformer une interface liquide sous l'action de la pression de radiation optique induite par une onde laser. Dans cette expérience historique datant de 1973, ils déformèrent la surface libre de l'eau en focalisant des impulsions laser très courtes à l'interface eau-air [44] (voir figure 1.6). La tension superficielle de cette interface étant relativement élevée ($\gamma_{eau/air} = 72$ mN/m), l'amplitude de la déformation est alors très faible et celle-ci ne peut donc être observée de manière directe. En revanche, une interface déformée par laser agit alors comme une lentille modifiant la propagation du faisceau, comme l'ont démontré Kats et Kontorovich [45]. Ashkin et Dziedzic ont alors exploité l'autofocalisation du faisceau laser incident par l'interface afin de démontrer l'existence d'une déformation. En étudiant la modification du faisceau, ils ont déduit le signe de la courbure et ont alors montré que la déformation était toujours orientée vers le milieu le moins réfringent (l'air dans ce cas). Avec cette expérience, Ashkin et Dziedzic ont alors posé les bases de la déformation d'interfaces par pression de radiation optique.

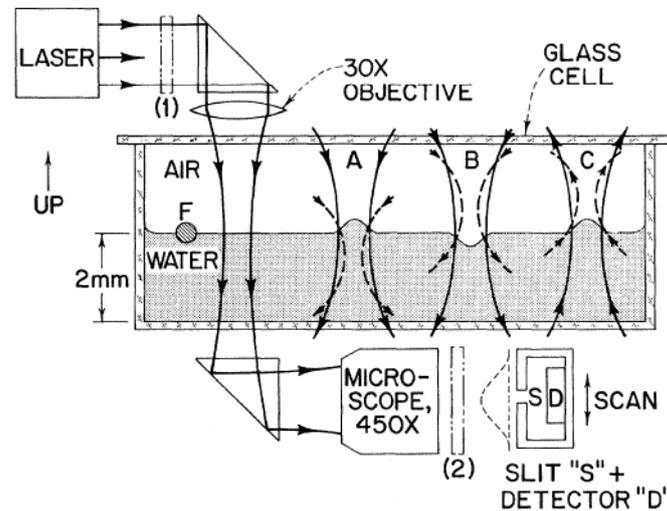


FIGURE 1.6 – *Dispositif de déformation de l'interface eau-air par pression de radiation optique utilisé par Ashkin et Dziedzic. Issue de [44].*

Au-delà de son aspect fondamental, la déformation d'interfaces induite optiquement offre de nombreuses perspectives, notamment dans la détermination sans contact des propriétés des interfaces. En effet, cette méthode optique est très avantageuse puisque la taille du faisceau excitateur peut aisément être réduite au micromètre, offrant ainsi une mesure très locale.

Ainsi Sakai *et al.* ont réalisé en 2001 la première tentative de mesure sans contact de la rhéologie de l'interface eau-air à partir de la pression de radiation optique [46]. Dans cette expérience, un faisceau laser pompe vient alors éclairer l'interface pour induire la déformation, qui est ensuite étudiée à l'aide d'un faisceau laser sonde (comme dans le cas de l'expérience d'Ashkin et Dziedzic). Ce procédé optique a ensuite été étendu pour mesurer la viscosité d'huiles de silicone [47] ou encore les propriétés visco-élastiques d'un gel d'agarose [48] en utilisant la technique de spectroscopie optique, dans une configuration plane où l'amplitude du laser de pompe est modulée en fréquence. Dans le cas d'une interface plane molle, il est également possible de détecter de manière directe la déformation statique due à la pression de radiation optique pour en déduire les propriétés interfaciales [49, 50], comme nous le montrerons plus tard.

Ces méthodes optiques ont par la suite été étendues à la déformation d'interfaces de géométrie sphérique, particulièrement courantes en microfluidique (gouttes) ou dans les systèmes biologiques (cellules, vésicules...). La déformation d'une interface dans cette géométrie est alors réalisée à l'aide d'un double piège optique, développé initialement par Constable *et al.* [51], constitué de deux faisceaux laser contra-propageants issus de fibres optiques. Un tel piège a ensuite été affiné par Guck *et al.* afin d'étudier la déformation de cellules qui sont assimilables à des matériaux viscoélastiques mous [52]. Ils ont alors montré que des objets sphériques pouvaient être étirés sous l'action des faisceaux laser (voir figure 1.7), d'où le nom d'*optical stretcher* donné à ce piège, qui a été très utilisé pour des études comparatives en biophysique [53, 54, 55]. Néanmoins, la description détaillée de la déformation d'objet sphérique par pression de radiation optique dans ce piège reste assez mal comprise.

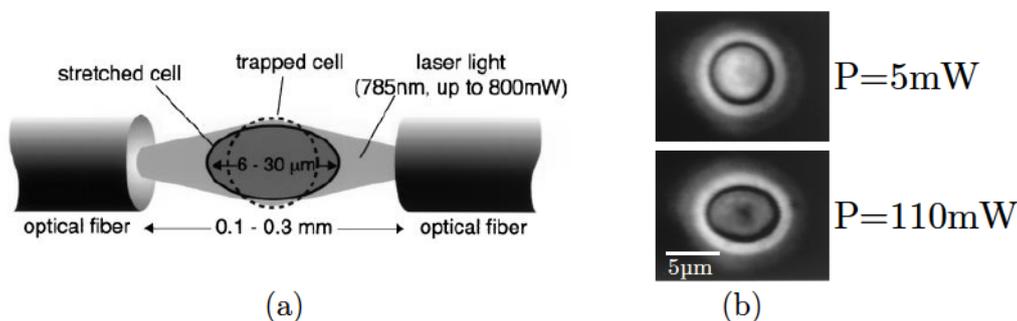


FIGURE 1.7 – (a) Schéma de principe de l'*optical stretcher* conçu par Guck *et al.* pour la déformation de cellules. (b) Déformation d'un globule rouge dans l'*optical stretcher*. Issues de [52].

1.4 Plan du manuscrit

L'utilisation de la pression de radiation optique constitue une méthode active très intéressante pour déformer sans aucun contact des interfaces aux petites échelles.

Dans ce contexte, le travail de recherche présenté dans ce manuscrit est donc dédié à la manipulation et la déformation d'interfaces molles par laser dans deux géométries fondamentales très différentes : plane et sphérique.

Suite à ce premier chapitre introductif, nous décrirons dans le chapitre 2 le mécanisme de pression de radiation optique, à l'origine des déformations d'interfaces. Cela nous permettra alors d'introduire les propriétés fondamentales de la pression de radiation optique, ce qui est nécessaire à la compréhension des déformations. Nous décrirons ensuite au chapitre 3 les systèmes fluides utilisés ainsi que le dispositif expérimental dédié à la déformation d'interfaces liquides planes. Nous étudierons alors au chapitre 4 les déformations d'interfaces induites sur ces systèmes et montrerons qu'elles peuvent être appliquées à la détermination de très faibles tensions interfaciales, ce qui constitue une mesure complexe et délicate pour laquelle peu de méthodes peuvent être employées. Lors du chapitre 5, nous nous intéresserons tout particulièrement aux déformations d'interfaces molles induites sous fortes excitations laser, pour lesquelles une interface liquide adopte alors une morphologie tout à fait surprenante. Nous décrirons ensuite au chapitre 6 le développement d'un double piège optique fibré pour la déformation d'objets sphériques mous, celui-ci ayant été réalisé dans une configuration jamais utilisée auparavant. Enfin nous utiliserons le dispositif développé dans cette étude pour le piégeage et la déformation optique d'interfaces molles en géométrie sphérique. Nous terminerons enfin ce manuscrit par les conclusions sur le travail de recherche effectué au cours de cette thèse et présenterons les perspectives qui en découlent. Les forces optiques conservent un potentiel d'applications dont nous ne percevons probablement pas encore toute la portée.

Chapitre 2

Pression de radiation optique induite par un faisceau laser

Ce chapitre est dédié à la description de la pression de radiation optique induite par un faisceau laser sur une interface. Nous commencerons par une première partie introductive sur l'histoire de la découverte des effets mécaniques de la lumière. Nous aborderons ensuite dans une seconde partie le cas d'une interface séparant deux milieux diélectriques soumise à un faisceau laser. Cet exemple nous permettra de définir de façon générale l'expression de la pression de radiation optique, en incidence quelconque, mais également d'introduire les concepts fondamentaux qui y sont associés. Enfin nous terminerons par un bilan des contraintes mécaniques agissant sur une interface liquide éclairée par laser.

2.1 Historique

Bien avant l'invention des lasers, les scientifiques s'intéressaient déjà aux effets mécaniques de la lumière sur la matière. En 1619, Kepler étudia le comportement des comètes et conclut que les particules situées sur le noyau étaient comme poussées par la lumière du Soleil, formant ainsi la queue des comètes [56], comme nous le voyons sur la figure 2.1a. Ce n'est que plus de 250 ans après qu'une preuve théorique de l'existence de la pression de radiation optique fut apportée par Maxwell par le développement du tenseur des contraintes électromagnétiques en 1873. À la même période, Crookes voulut mettre en évidence ce phénomène et développa un moulin à lumière composé de pâles présentant une face réfléchissante et une face noire [57] (voir figure 2.1b). Dans la pratique, ce moulin est mis en mouvement par la lumière mais sous l'action d'effets radiométriques et thermodynamiques induits par l'absorption des faces noires! (d'où le nom de radiomètre de Crookes).

Malgré les travaux expérimentaux de Lebedev en 1901 [58] et Nichols et Hulls en 1903 [59] mettant en évidence la pression de radiation, ce sujet fut par la suite délaissé par manque

d'applications potentielles. À l'exception des travaux de Jones et Richard en 1954 sur la force exercée par un rayonnement sur miroir immergé [60], peu de travaux furent menés sur ce sujet avant les années 1960.

Ce n'est qu'avec l'avènement des lasers que ce domaine reprit de l'intérêt pour les scientifiques donnant ainsi naissance au développement du piégeage et de la lévitation optique. Nous ne pouvons désormais plus parler de pression de radiation optique sans mentionner les travaux fondateurs d'Ashkin sur ce sujet [1, 2, 3, 44]. Depuis cette époque, la pression de radiation optique est désormais utilisée pour de nombreuses applications telles que l'étude d'objets biologiques [61, 62], le piégeage et le refroidissement d'atomes [63, 64, 65] ou encore le transport spatial par des voiliers solaires comme *Cosmos 1* lancé en 2005.

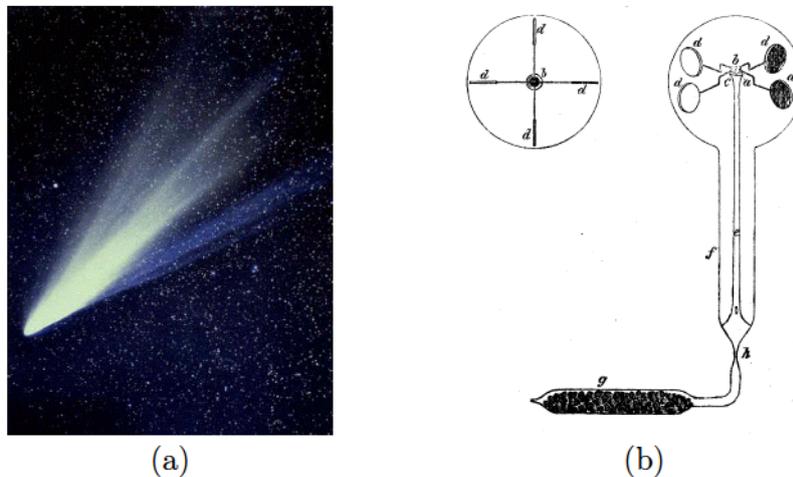


FIGURE 2.1 – (a) Photographie de la comète West. La queue blanche de la comète est produite par évaporation de la poussière et de débris qui sont poussés par la pression de radiation solaire. (b) Schéma du radiomètre utilisé par Crookes. Issu de [57].

2.2 Pression de radiation optique exercée sur une interface

Afin d'introduire le phénomène de pression de radiation optique et de comprendre son origine physique, considérons ici le cas simple d'un faisceau laser continu éclairant une interface déformée séparant deux milieux diélectriques. En effet dans le cas d'une interface liquide molle par exemple, celle-ci peut se déformer sous l'action de la lumière. Cette géométrie de l'interface nous permet ainsi de définir l'expression de la pression de radiation optique induite par un faisceau laser dans le cas général d'une incidence quelconque.

Considérons un faisceau laser arrivant en incidence θ_i , par rapport à la normale, sur une interface déformée séparant deux milieux diélectriques. Dans cet exemple, l'onde in-

cidente se propage depuis le milieu d'indice de réfraction n_2 vers le milieu d'indice de réfraction n_1 (avec $n_1 < n_2$) suivant la direction \vec{u}_z orientée dans le sens de propagation du faisceau (vers le bas), ce qui correspond à notre géométrie expérimentale comme nous le verrons au chapitre 3. Du fait de la discontinuité des indices de réfraction entre les deux milieux, un photon en incidence θ_i sur l'interface est en partie réfracté suivant un angle θ_t et réfléchi suivant l'angle θ_r , comme illustré sur la figure 2.2.

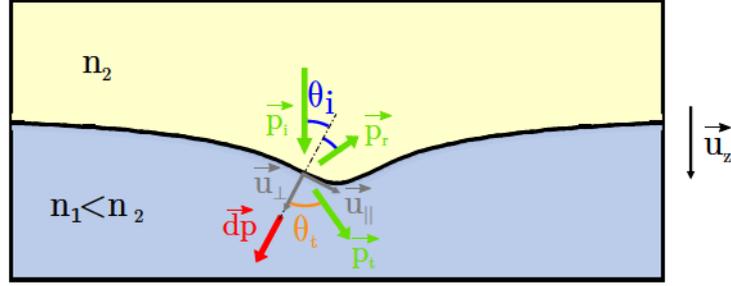


FIGURE 2.2 – Représentation schématique pour le calcul de la pression de radiation optique induite par laser sur une interface déformée séparant deux milieux d'indice de réfraction n_k différent. Le faisceau laser se propage du haut vers le bas et intercepte l'interface avec un angle d'incidence θ_i .

D'après le principe de conservation de l'impulsion appliqué à un photon incident, nous pouvons en déduire la variation de quantité de mouvement à l'interface :

$$\vec{dp} = \vec{p}_i - (\vec{p}_r + \vec{p}_t) \quad (2.1)$$

avec \vec{p}_i , \vec{p}_t et \vec{p}_r les impulsions du photon incident, transmis et réfléchi respectivement.

La norme de l'impulsion d'un photon dans un milieu d'indice optique n_k est défini par $p_k = \frac{n_k E}{c}$ avec $E = h\nu$ où E est l'énergie du photon, h la constante de Planck, ν la fréquence de l'onde laser et c la célérité de la lumière dans le vide. En remplaçant les quantités de mouvement par leurs expressions, l'équation 2.1 devient donc :

$$\begin{aligned} \vec{dp} = \vec{dp}_{\parallel} + \vec{dp}_{\perp} = & \frac{E}{c} [n_2 \sin \theta_i - (n_2 \sin \theta_i R(\theta_i, \theta_t) + n_1 \sin \theta_t T(\theta_i, \theta_t))] \vec{u}_{\parallel} \\ & + \frac{E}{c} [n_2 \cos \theta_i - (-n_2 \cos \theta_i R(\theta_i, \theta_t) + n_1 \cos \theta_t T(\theta_i, \theta_t))] \vec{u}_{\perp} \end{aligned} \quad (2.2)$$

où \vec{dp}_{\parallel} et \vec{dp}_{\perp} représentent respectivement la variation de quantité de mouvement dans les directions tangente et normale à l'interface déformée, et $R(\theta_i, \theta_t)$ et $T(\theta_i, \theta_t)$ sont les coefficients en intensité de réflexion et transmission de Fresnel pour un angle incident θ_i

et réfracté θ_t donnés par :

$$\begin{aligned} R(\theta_i, \theta_t) &= \left(\frac{n_2 \cos \theta_t - n_1 \cos \theta_i}{n_2 \cos \theta_t + n_1 \cos \theta_i} \right)^2 \\ T(\theta_i, \theta_t) &= \frac{4n_1 n_2 \cos \theta_i \cos \theta_t}{(n_2 \cos \theta_t + n_1 \cos \theta_i)^2} \end{aligned} \quad (2.3)$$

Un photon arrivant depuis le milieu d'indice n_2 en incidence θ_i à l'interface est réfracté suivant la loi de Snell-Descartes $n_2 \sin \theta_i = n_1 \sin \theta_t$. De plus, les coefficients de Fresnel sont tels que $T(\theta_i, \theta_t) = 1 - R(\theta_i, \theta_t)$, ce qui implique d'après l'équation 2.2 que $\overrightarrow{dp}_{\parallel} = \overrightarrow{0}$. Il n'y a donc pas de transfert de quantité de mouvement dans la direction parallèle à l'interface en l'absence de dissipation. La variation de quantité de mouvement est donc normale à l'interface et vaut :

$$\overrightarrow{dp} = \overrightarrow{dp}_{\perp} = \frac{n_2 E}{c} \cos \theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{n_1 \cos \theta_t}{n_2 \cos \theta_i} T(\theta_i, \theta_t) \right] \overrightarrow{u}_{\perp} \quad (2.4)$$

Ce résultat correspond à la variation de quantité de mouvement d'un seul photon incident d'énergie E . En réalité, le faisceau laser continu éclairant l'interface est composé de N photons par unité de surface et de temps. La variation totale de quantité de mouvement induite par le faisceau, qui n'est rien d'autre que la quantité de mouvement reçue par l'interface, est donc :

$$\overrightarrow{dp}_{tot} = \overrightarrow{p}_{int} = \frac{n_2 E}{c} \cos \theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{n_1 \cos \theta_t}{n_2 \cos \theta_i} T(\theta_i, \theta_t) \right] N dS dt \overrightarrow{u}_{\perp} \quad (2.5)$$

L'intensité laser I s'exprime en W/m^2 et correspond à l'énergie du faisceau par unité de temps et de surface. Elle est définie par $I = E_{faisceau}/(dS dt) = N_0 E$ où N_0 est le nombre de photons par unité de temps passant à travers une surface perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau laser. Pour un faisceau laser en incidence θ_i sur l'interface, on a donc $N = N_0 \cos \theta_i$. À partir de l'équation 2.5, nous pouvons donc en déduire la pression de radiation optique $\Pi_{rad} = \|\overrightarrow{dp}_{tot}\|/(dS dt)$ induite par le faisceau laser provenant du milieu d'indice n_2 en incidence θ_i sur l'interface :

$$\Pi_{rad} = \frac{n_2 I}{c} \cos^2 \theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \quad (2.6)$$

Nous venons de montrer dans cette partie que la pression de radiation optique exercée sur l'interface résulte du transfert de quantité de mouvement de la lumière à l'interface, ayant pour origine la discontinuité des indices optiques entre les milieux. Nous avons également prouvé que la force optique associée à cette pression de radiation agit de manière normale en tout point de l'interface, quelle que soit l'incidence du faisceau laser.

Nous pouvons aller plus loin en considérant le cas simple d'une interface plane pour laquelle le faisceau arrive alors en incidence normale. En remplaçant les coefficients en intensité de réflexion et transmission de Fresnel par leurs expressions en incidence normale ($\theta_i = 0^\circ$), nous déduisons alors une expression simplifiée de la pression de radiation. En incidence normale, ces coefficients sont donnés par :

$$R = \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right)^2 \quad \text{et} \quad T = \frac{4n_1n_2}{(n_1 + n_2)^2} \quad (2.7)$$

ce qui donne

$$\Pi_{rad}(\theta_i = 0) = \frac{2n_2 I}{c} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \quad (2.8)$$

Nous remarquons donc que la force optique associée à la pression de radiation est alors orientée suivant \vec{u}_z , confondu avec \vec{u}_1 dans ce cas, donc du milieu le plus réfringent vers le moins réfringent (puisque $n_2 > n_1$). Ce résultat peut sembler résulter de notre choix sur le sens de propagation du faisceau (dirigé de n_2 vers n_1) dans notre exemple. En considérant une propagation du faisceau du milieu d'indice optique n_1 vers n_2 , il suffit alors de remplacer \vec{u}_1 par $-\vec{u}_1$ et d'invertir n_1 et n_2 dans la formule 2.5 et dans les expressions des coefficients R et T , en considérant toujours $\theta_i = 0^\circ$. Nous aboutissons alors à la même expression de la pression de radiation optique, à l'exception du préfacteur $\frac{2n_2}{c}$ qui est remplacé par $\frac{2n_1}{c}$. Cela signifie que la pression de radiation optique agit toujours du milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent, quel que soit le sens de propagation du faisceau laser. Sous l'effet de la pression de radiation optique induite par un faisceau laser une interface molle se déforme donc toujours vers le milieu le moins réfringent.

Dans le cas général d'une incidence quelconque, l'équation 2.6 montre que la pression de radiation optique agissant sur une interface dépend de l'incidence du faisceau laser. Dans nos expériences, nous disposons d'un faisceau laser gaussien dont le profil d'intensité est décrit par $I(r, z) \approx I(r) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right)$ où P et ω_0 sont respectivement la puissance et le rayon au col du faisceau laser incident. Nous pouvons en déduire l'expression de la pression de radiation optique induite par un faisceau laser gaussien sur une interface :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{2Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \cos^2 \theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (2.9)$$

Les figures 2.3 (a) et (b) représentent respectivement la pression de radiation optique et cette dernière normalisée par la pression de radiation en incidence normale (équation 2.8), induite par un faisceau laser sur une interface en fonction de l'angle d'incidence. Ces calculs ont été réalisés en $r = 0$ (sur l'axe du faisceau laser) et pour différents contrastes

relatifs d'indices optiques $\delta = \frac{n_2 - n_1}{n_2}$.

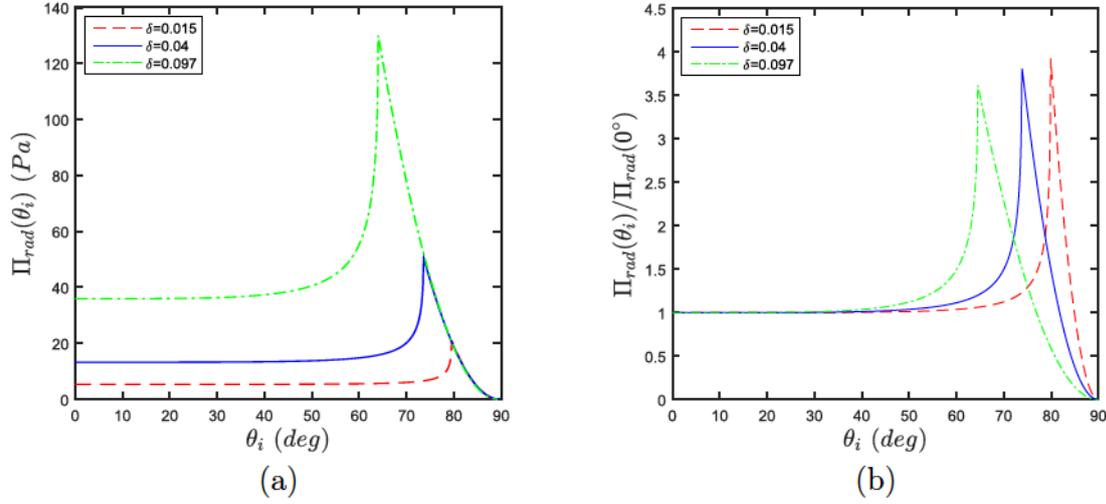


FIGURE 2.3 – (a) Variation de la pression de radiation optique induite par un faisceau laser gaussien en fonction de l'angle d'incidence θ_i . Chaque courbe représente un rapport $\delta = \frac{n_2 - n_1}{n_2}$ différent. (b) Variation de la pression de radiation optique normalisée en fonction de l'angle d'incidence, pour les mêmes rapports δ . Pour ces calculs, nous nous plaçons sur l'axe du faisceau (en $r = 0$), la puissance du faisceau laser est $P = 1W$ et le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 3\mu m$.

Nous remarquons tout d'abord la forme particulière des courbes présentées en figure 2.3. En effet, la pression de radiation optique varie peu pour des angles d'incidence θ_i inférieurs à 40° et ne diffère pas (ou peu) de la pression de radiation en incidence normale. Pour des angles d'incidence plus importants, la pression de radiation optique augmente brutalement jusqu'à atteindre un pic à l'angle de réflexion totale θ_{RT} , où elle est environ 4 fois plus élevée qu'en incidence normale [66], comme illustré sur la figure 2.3b. L'angle de réflexion totale de l'onde incidente se propageant du milieu d'indice n_2 vers n_1 est défini par $\theta_{RT} = \arcsin(n_1/n_2)$ et il est d'autant plus petit que le rapport $\delta = \frac{n_2 - n_1}{n_2}$ est grand.

Pour des angles d'incidence supérieurs à θ_{RT} , le faisceau laser est totalement réfléchi dans le milieu d'indice n_2 . Dans ces conditions, les coefficients de Fresnel se simplifient et valent respectivement $R = 1$ et $T = 0$ ce qui conduit à une expression simplifiée de la pression de radiation optique qui décroît alors rapidement en $\cos^2 \theta_i$ jusqu'à s'annuler aux grands angles d'incidence.

$$\Pi_{rad}^{RT}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{2n_2 I(r)}{c} \cos^2 \theta_i = \frac{4Pn_2}{\pi c \omega_0^2} \cos^2 \theta_i \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (2.10)$$

Comme nous pouvons le constater sur la figure 2.3a, la pression de radiation optique est d'autant plus importante que le rapport δ est grand. Cela signifie donc qu'en augmentant le contraste d'indice de réfraction $\Delta n = n_2 - n_1$ entre les deux milieux, nous

augmentons l'amplitude de la pression de radiation. En effet, en reprenant l'équation 2.8 pour une incidence normale, nous remarquons que la pression de radiation optique est proportionnelle au contraste d'indice de réfraction $\Delta n = n_2 - n_1$ entre les deux milieux. Ainsi un choix judicieux des milieux en fonction de leurs propriétés optiques permet de réaliser de manière simple une modulation de l'amplitude de la pression de radiation optique agissant sur l'interface, ce qui justifie le choix des systèmes fluides qui seront décrits au prochain chapitre.

Par souci de simplicité, nous avons déterminé dans ce chapitre l'expression de la pression de radiation optique par une approche corpusculaire. Notons que la pression de radiation optique induite par un faisceau laser sur une interface peut également être calculée par une approche ondulatoire. Il faut alors évaluer le saut de contraintes du tenseur électromagnétique de Maxwell. Avec cette approche nous comprenons alors mieux pourquoi la pression de radiation optique augmente avec le contraste d'indice optique. En augmentant ce contraste, nous accentuons la discontinuité de constantes diélectriques à l'interface ce qui augmente le saut de contraintes. Cette approche ondulatoire aboutit évidemment à la même expression de la pression de radiation optique que l'approche corpusculaire que nous avons adoptée.

Notons également que dans les calculs précédents nous avons choisi le formalisme de Minkowski dans lequel la définition de l'impulsion d'un photon se propageant dans un milieu d'indice optique n_k est $p = \frac{n_k h\nu}{c}$ [67]. Il existe en effet une autre définition de cette impulsion, proposée par Abraham à la même époque : $p = \frac{h\nu}{n_k c}$ [68, 69]. Dans ce formalisme, la pression de radiation optique est alors orientée du milieu d'indice de réfraction le plus faible vers le milieu d'indice le plus élevé. Cela engendrerait alors des déformations d'interfaces dirigées vers le milieu le plus réfringent, ce qui est incompatible avec les comportements que nous observons expérimentalement (comme nous le verrons par la suite) ou encore ceux observés par Ashkin et Dziedzic [44].

2.3 Équation d'équilibre mécanique de l'interface

Dans cette partie, nous allons dresser le bilan des contraintes mécaniques agissant sur une interface liquide molle éclairée par un faisceau laser continu. Nous considérons notre géométrie expérimentale à savoir une onde laser se propageant de haut en bas, du milieu le plus réfringent d'indice n_2 vers le moins réfringent d'indice n_1 (voir figure 2.4).

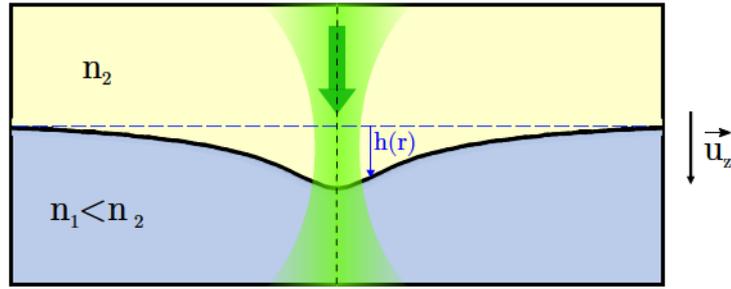


FIGURE 2.4 – Représentation schématique d'une interface déformée par pression de radiation optique. Le faisceau laser est focalisé au niveau de l'interface non déformée, matérialisée par la ligne pointillée bleue.

Cas général

Comme nous l'avons mentionné précédemment, une interface liquide molle peut se déformer sous l'action de la pression de radiation optique Π_{rad} d'une onde laser. L'interface liquide, déformée vers le bas, est alors soumise à deux autres contraintes mécaniques qui s'opposent à sa déformation : la pression de Laplace $\Pi_{Laplace} = \gamma\kappa(r)$ due aux forces capillaires qui tendent à minimiser l'énergie de surface de l'interface et la poussée d'Archimède due à la différence de masse volumique entre les deux liquides.

En régime stationnaire de déformation, l'équilibre des contraintes mécaniques exercées sur l'interface en l'absence d'écoulement s'écrit :

$$\Pi_{rad}(r) = \gamma\kappa(r) - \Delta\rho gh(r) \quad (2.11)$$

où γ est la tension interfaciale, $\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2$ est le contraste de masse volumique entre les deux liquides et $h(r)$ est la hauteur de déformation de l'interface. $\kappa(r)$ représente la courbure moyenne de l'interface et s'exprime de façon générale par :

$$\kappa(r) = \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(\frac{rh'(r)}{\sqrt{1+h'^2}} \right) \quad (2.12)$$

Cas de faibles déformations

Dans le cas de faibles déformations de l'interface, nous pouvons nous placer dans une approximation linéaire d'ordre 1 en $h'(r) = dh/dr$ et par conséquent assimiler la courbure $\kappa(r)$ par le laplacien transverse de la hauteur de déformation. L'équation de l'interface devient alors :

$$\Pi_{rad}(r) = \gamma\Delta_r h(r) - \Delta\rho gh(r) \quad (2.13)$$

En considérant l'expression de la pression de radiation optique en incidence normale donnée par la formule 2.8 pour un faisceau gaussien et de faibles courbures de l'interface,

cette équation devient :

$$\frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) = \gamma\Delta_r h(r) - \Delta\rho gh(r) \quad (2.14)$$

Nombres caractéristiques

Il est d'usage en hydrodynamique d'estimer l'importance relative des différents effets par le biais de nombres sans dimension, caractéristiques du problème.

Afin de comparer les effets de la pression de radiation optique par rapport aux effets capillaires, nous utilisons un nombre sans dimension appelé Π_0 qui est défini comme le rapport des effets optiques sur les effets capillaires :

$$\Pi_0 = \frac{\Pi_{rad}}{\Pi_{Laplace}} = \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0\gamma} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \quad (2.15)$$

Pour pouvoir déformer une interface liquide par laser, les effets induits optiquement doivent être dominants par rapports aux effets capillaires et par conséquent il faut donc que $\Pi_0 > 1$.

L'importance relative des effets de gravité par rapport aux effets capillaires est évaluée par le nombre de Bond. La définition classique de ce nombre sans dimension fait intervenir une longueur caractéristique qui est, dans notre cas, le rayon au col du faisceau ω_0 . Nous parlons donc de nombre de Bond optique :

$$Bo = \frac{\Delta\rho gh}{\Pi_{Laplace}} = \frac{\Delta\rho g\omega_0^2}{\gamma} \quad (2.16)$$

Ce nombre de Bond optique peut également être vu comme le rapport de deux longueurs caractéristiques du problème. En effet, en introduisant la longueur capillaire l_c , nous obtenons :

$$Bo = \left(\frac{\omega_0}{l_c} \right)^2 \quad (2.17)$$

où $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\Delta\rho g}}$. Ainsi lorsque $\omega_0 < l_c$ (ou $Bo < 1$), les effets de tension interfaciale prédominent sur les effets de gravité et inversement.

Ordre de grandeur

Afin de donner une idée de l'ordre de grandeur des différents termes de l'équation 2.11, considérons le cas d'une interface eau-air ($\gamma = 73\text{mN/m}$, $n_2=1.33$ et $n_1=1$) éclairée par un faisceau laser gaussien de paramètres typiques $P = 1\text{W}$ et $\omega_0 = 3\mu\text{m}$. Dans le cas de faibles déformations, la courbure de l'interface entre l'eau et l'air est estimée par $\Delta_r h(r) \sim h/R^2$ où R est une longueur caractéristique qui correspond au rayon au col du

2.3. ÉQUATION D'ÉQUILIBRE MÉCANIQUE DE L'INTERFACE

faisceau ω_0 . De même nous supposons que la hauteur de déformation est $h \sim \omega_0$. Nous estimons alors les différents termes par :

$$\Pi_{rad} \sim 100Pa \quad ; \quad \Pi_{Laplace} \sim \frac{\gamma}{\omega_0} \sim 2 \times 10^4 Pa \quad ; \quad \Delta\rho gh \sim 3 \times 10^{-2} Pa$$

Nous remarquons ainsi que la gravité apporte une faible contribution à l'équilibre de l'interface puisque $\Delta\rho gh \ll \Pi_{Laplace}$. Le nombre de Bond correspondant est $Bo \sim 10^{-6}$. Il apparait également que $\Pi_{rad} \ll \Pi_{Laplace}$ pour une interface eau-air pour laquelle $\Pi_0 \sim 4 \times 10^{-3} \ll 1$. Cela signifie que pour pouvoir déformer une interface liquide par laser (avec une puissance de l'ordre de quelques W), il faut alors réduire la pression de Laplace et par conséquent utiliser des systèmes fluides de très basse tension interfaciale. La description de tels systèmes fera en partie l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 3

Techniques expérimentales dédiées

Ce chapitre est dédié à la description des diverses techniques expérimentales utilisées au cours de cette thèse. L'utilisation de systèmes particuliers est motivée par le besoin de bénéficier d'interfaces fluides très déformables et donc exhibant de très faibles tensions interfaciales. Ceci est justifié par les faibles amplitudes des forces optiques mises en jeu, de l'ordre du piconewton, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent. Afin d'éviter toute élévation de température dans l'échantillon et de ne considérer que les effets de pression de radiation optique, ces systèmes ne doivent également pas présenter d'absorption à la longueur d'onde utilisée. Nous disposons alors de deux systèmes fluides répondant à ces critères : les microémulsions quasi-critiques et les équilibres de phases de Winsor. Cependant, la détermination des caractéristiques physiques de nos échantillons passe *de facto* par la mise en place d'outils de métrologie adaptés et de techniques expérimentales dédiées. En effet, les systèmes fluides utilisés étant contenus dans une cellule en verre fermée, aucune mesure directe et *in situ* à l'aide de méthodes "classiques" n'est alors possible. Cela nécessite donc de créer des objets (gouttes, colonnes liquides) que nous pouvons ensuite manipuler et étudier afin de remonter aux propriétés des échantillons.

Dans ce chapitre, nous présenterons dans une première partie les différents systèmes fluides utilisés au cours de notre étude ainsi que leur caractérisation expérimentale. Dans une seconde partie, nous décrirons le montage expérimental qui permet de déformer optiquement des interfaces liquides planes par laser ainsi que ses spécificités.

3.1 Systèmes fluides de faible tension interfaciale

3.1.1 Microémulsions quasi-critiques

Ce système fluide est un mélange quaternaire composé d'huile, d'eau ultrapure, d'un surfactant et généralement d'un co-surfactant. L'ajout de tensioactif a pour but de réduire la tension interfaciale, alors que le co-surfactant, ici l'alcool, sert à stabiliser le mélange.

Les molécules tensioactives, constituées d'une tête polaire et d'une seule chaîne carbonée hydrophobe dans notre cas, s'adsorbent à l'interface eau-huile formant ainsi des micelles, directes (d'huile dans l'eau) ou inverses (d'eau dans l'huile) en fonction des proportions du mélange, en suspension dans une phase continue. Notre mélange étant majoritairement constitué d'huile, nous obtenons alors une microémulsion constituée de micelles inverses en suspension dans une phase continue d'huile.

La particularité des microémulsions quasi-critiques repose sur la dépendance de l'amplitude des propriétés physiques de ce système, comme la tension interfaciale, avec l'écart en température au point critique. En effet, thermalisé à une température inférieure à une température T_C dite critique, l'échantillon se présente sous la forme d'une phase homogène et isotrope alors qu'au-dessus de cette température nous observons une démixtion de l'échantillon en deux phases distinctes. Ces deux phases possèdent alors des concentrations micellaires différentes ; la densité de l'eau étant supérieure à celle de l'huile, l'échantillon est constitué d'une phase riche en micelles (de fraction volumique Φ_1) surmontée d'une phase pauvre en micelles (de fraction volumique Φ_2) comme on peut le voir sur la figure 3.1. Ce système peut donc être considéré comme un mélange pseudo-binaire.

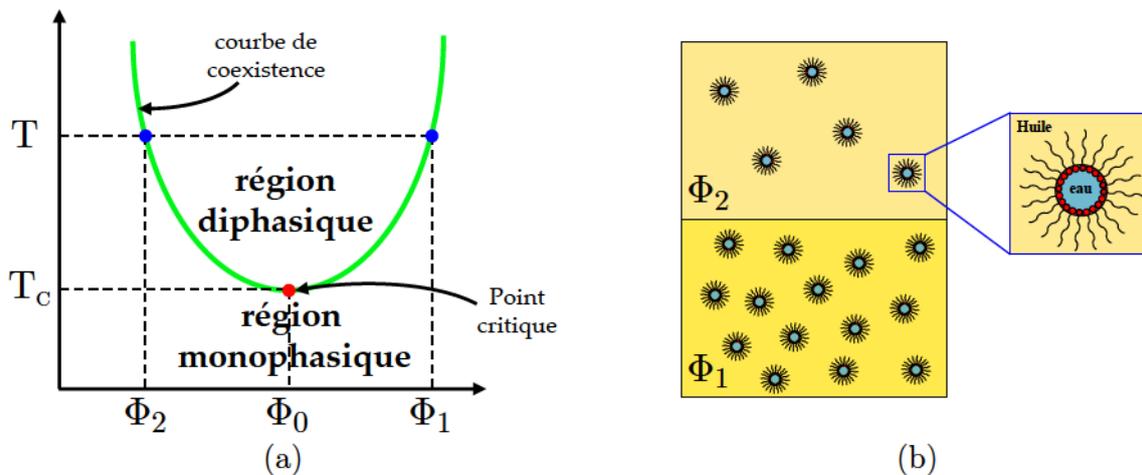


FIGURE 3.1 – (a) Représentation schématique du diagramme de phases en (Φ, T) d'une micro-émulsion quasi-critique lorsque l'huile est en excès. (b) Représentation de l'échantillon biphasique de microémulsion pour $T > T_C$. La phase riche en micelles est surmontée d'une phase pauvre en micelles. Un zoom permet d'observer la structure d'une micelle inverse. Le rayon moyen des micelles a été mesuré par diffusion de la lumière et vaut $R_{micelle} = 40 \text{ \AA}$.

Au voisinage du point critique, les différentes propriétés physiques de ce système peuvent être décrites à l'aide de la théorie du modèle d'Ising sur les transitions de phase du second ordre. Dans cette théorie, l'énergie libre s'exprime sous la forme d'un développement limité en puissances d'un paramètre d'ordre qui est, dans le cas des microémulsions, un scalaire correspondant au contraste de fraction volumique en micelles $\Delta\Phi = |\Phi_1 - \Phi_2|$

entre les deux phases. Les propriétés thermophysiques de ces deux phases peuvent donc être exprimées en terme de lois de puissance en fonction de l'écart à la température critique, dont les exposants sont déduits ici du groupe de renormalisation pour les systèmes Ising ($d = 3, n = 1$) où d est la dimension d'espace, $3D$, et n la dimension du paramètre d'ordre. Ainsi, la largeur de la courbe de coexistence s'exprime par :

$$\Delta\Phi = \Delta\Phi_0 \left(\frac{T - T_c}{T_c} \right)^\beta \quad (3.1)$$

où l'exposant critique vaut $\beta = 0.325$ et l'amplitude critique de la largeur de la courbe de coexistence vaut $\Delta\Phi_0 = 0.275$. Cette valeur a été déterminée par comparaison d'expériences et de simulations numériques de déformations d'interfaces fluides induites par laser à faibles puissances [70]. Il est alors possible de déterminer les fractions volumiques de chacune des deux phases. Pour cela, nous supposons que la courbe de coexistence est symétrique par rapport au point critique (approximation raisonnable près du point critique), ce qui conduit à :

$$\begin{cases} \Phi_1 = \Phi_0 + \Delta\Phi/2 \\ \Phi_2 = \Phi_0 - \Delta\Phi/2 \end{cases} \quad (3.2)$$

avec $\Phi_0 = 0.11$ [70] qui correspond à la fraction micellaire volumique du mélange.

Indices de réfraction

Nous pouvons maintenant estimer les indices de réfraction de chacune des phases de l'échantillon critique à l'aide de la formulation de Landau [71], qui fait intervenir les fractions volumiques de micelles :

$$\epsilon_r(\Phi_k) = \Phi_k \epsilon_{r,micelles} + (1 - \Phi_k) \epsilon_{r,continue} - \frac{\Phi_k(1 - \Phi_k)(\epsilon_{r,micelles} - \epsilon_{r,continue})^2}{3(\Phi_k \epsilon_{r,micelles} + (1 - \Phi_k) \epsilon_{r,continue})} \quad (3.3)$$

où $\epsilon_{r,micelles} = 1.86$ et $\epsilon_{r,continue} = 2.14$ sont les permittivités diélectriques relatives des micelles et de la phase continue respectivement. L'indice de réfraction de la phase k correspond à $n_k = \sqrt{\epsilon_r(\Phi_k)}$, ce qui conduit à un contraste d'indices de réfraction Δn entre les deux phases :

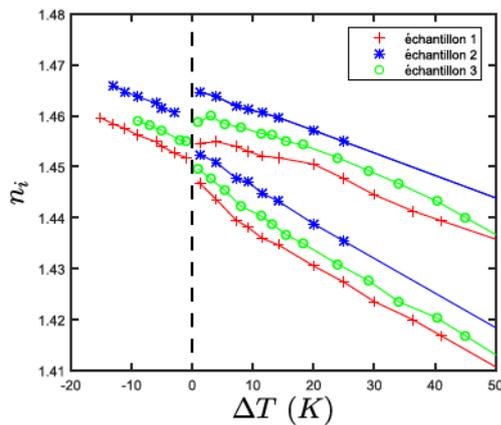
$$\Delta n = \Delta n_0 \left(\frac{T - T_c}{T_c} \right)^\beta \quad (3.4)$$

où l'exposant critique vaut $\beta = 0.325$ et l'amplitude critique vaut $\Delta n_0 = 0.02745$.

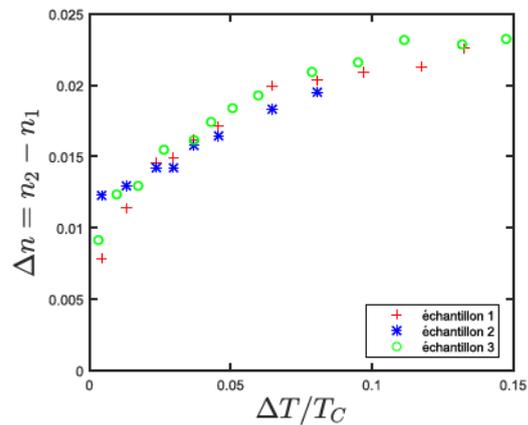
Nous remarquons d'après cette loi de puissances qu'en diminuant l'écart à la température critique le contraste d'indices de réfraction Δn devient de plus en plus faible, ce qui est logique puisque nous tendons à obtenir un échantillon monophasique. Ainsi en se rapprochant du point critique, la pression de radiation optique qui est proportionnelle à Δn

(équation 2.8) devient alors extrêmement faible également. Afin d'explorer des régions du diagramme de phases où le contraste d'indices optiques (et donc la pression de radiation) est plus important, nous nous sommes donc éloignés du point critique en choisissant des écarts à la température critique allant de $\Delta T = 5\text{K}$ à $\Delta T = 35\text{K}$.

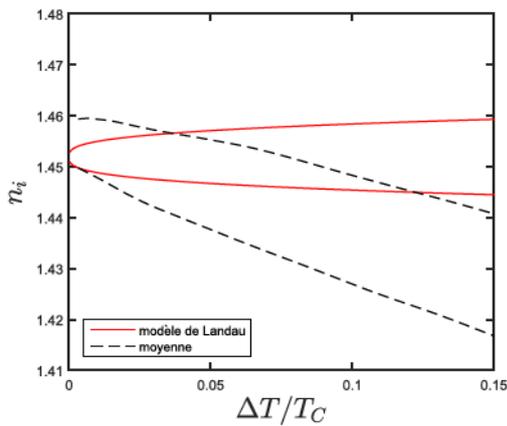
Dans le modèle de Landau, la microémulsion est considérée comme un mélange d'une phase continue homogène et isotrope avec une phase dispersée dont la concentration doit être faible, et pour laquelle les inhomogénéités (ici les micelles) sont considérées sphériques. Pour des écarts à la température critique ΔT importants, les concentrations micellaires peuvent devenir suffisamment élevées pour mettre en défaut ce modèle. Ayant mené nos expériences relativement loin du point critique, nous avons donc déterminé expérimentalement les indices optiques de ce système fluide diphasique.



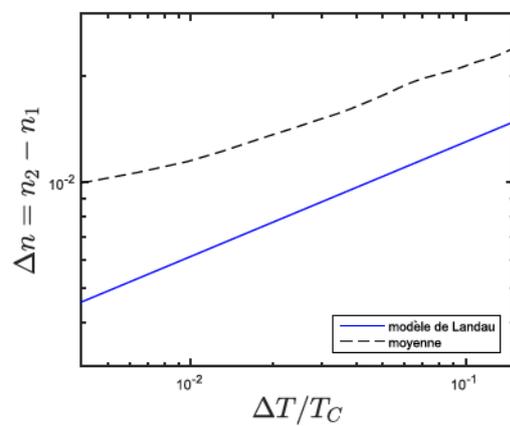
(a) Indices optiques en fonction de l'écart à la température critique.



(b) Contraste d'indices optiques en fonction de l'écart à la température critique normalisé



(c) Indices optiques moyens fonction de l'écart à la température critique normalisé.



(d) Contraste d'indices optiques moyen en fonction de l'écart à la température critique normalisé

FIGURE 3.2 – Mesures d'indices optiques dans des microémulsions quasi-critiques

Les microémulsions quasi-critiques étant un système complexe dépendant de la température, il n'est pas possible de séparer les deux phases pour en déterminer directement les propriétés. Ainsi nous ne pouvons par exemple pas mesurer l'indice de réfraction des phases à l'aide d'un réfractomètre d'Abbe, comme on peut le faire pour des liquides classiques. Nous avons donc mesuré les indices de réfraction n_k de chacune des deux phases en fonction de l'écart à la température critique par goniométrie. L'expérience consiste en l'étude du minimum de déviation d'un faisceau laser par une cellule prismatique thermostatée contenant notre échantillon diphasique (plus de détails sont présentés en annexe A). Cette expérience constitue ainsi la première mesure absolue d'indices optiques dans des microémulsions quasi-critiques, ces derniers étant jusque-là estimés par la formule de Landau (3.3) (ou celle de Clausius-Mosotti donnant des résultats quasi identiques).

Ces mesures d'indices optiques ont été réalisées pour 3 échantillons différents afin de s'assurer de la répétabilité des résultats en fonction de l'écart à la température critique ΔT . Malgré des valeurs d'indices optiques légèrement différentes d'un échantillon à l'autre (voir figure 3.2a), nous observons le même comportement en fonction de ΔT . Dans la région monophasique ($\Delta T < 0$), l'indice optique décroît jusqu'à la démixtion de l'échantillon à $T = T_C$. Dans la région diphasique ($\Delta T > 0$), l'indice optique n_k de chacune des phases subit alors une variation rapide proche de T_C puis décroît avec l'écart à la température critique. Malgré la différence d'indices optiques observée entre les échantillons, nos mesures conduisent néanmoins au même contraste d'indice optique Δn , qui augmente avec ΔT comme le montre la figure 3.2b. Cela nous a donc conduit à considérer les indices optiques moyens comme illustré par les figures 3.2c-d. Ainsi en connaissant la température critique T_C ainsi que l'écart ΔT à celle-ci dans nos expériences, nous pouvons en déduire les indices de réfraction de nos échantillons par les formules empiriques :

$$\begin{aligned} n_1(T) &= 1.451 - 0.1749 (\Delta T/T_C)^{0.864} \\ n_2(T) &= 1.46 - 0.2225 (\Delta T/T_C)^{1.294} \end{aligned} \tag{3.5}$$

Nous remarquons que nos mesures d'indices optiques présentent une dépendance avec la température s'éloignant légèrement du modèle de Landau (voir figure 3.2c). De plus, les indices optiques expérimentaux moyens diffèrent pour $\Delta T = 0$ alors qu'ils devraient être égaux (l'échantillon est monophasique). Cet écart s'explique par la difficulté qui existe pour réguler la température de notre échantillon de manière précise très proche du point critique, limitant ainsi les mesures dans cette gamme de températures. Nos mesures expérimentales d'indices optiques conduisent alors à un comportement critique du contraste Δn , dont l'amplitude est environ deux fois plus importante que celle prédite par le modèle (voir figure 3.2d).

Contraste de masse volumique

La masse volumique ρ_k de chaque phase se déduit simplement des fractions micellaires par l'expression :

$$\rho_k = \rho_{micelles}\Phi_k + \rho_{continue}(1 - \Phi_k) \quad (3.6)$$

où $\rho_{micelles} = 1045.0 \text{ kg.m}^{-3}$ et $\rho_{continue} = 850.3 \text{ kg.m}^{-3}$ sont les masses volumiques respectives des micelles et de la phase continue [70].

En considérant les équations (3.1), (3.2) et (3.6), nous pouvons déterminer l'expression du contraste de masse volumique entre les deux phases $\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2$:

$$\Delta\rho = \Delta\rho_0 \left(\frac{T - T_c}{T_c} \right)^\beta \quad (3.7)$$

avec $\Delta\rho_0 = \Delta\Phi_0(\rho_{micelles} - \rho_{continue}) = 53.5 \text{ kg.m}^{-3}$ et $\beta = 0.325$.

Dans cette démarche, nous avons supposé que le diagramme de phases est symétrique par rapport au point critique, ce qui est vérifié localement très proche de ce dernier. En revanche le diagramme de phases devient asymétrique en s'éloignant du point critique, il devient alors légitime de remettre en question une détermination précise du contraste de masse volumique $\Delta\rho$ à l'aide de l'expression 3.7. Nous avons donc déterminé expérimentalement le contraste $\Delta\rho$ entre les deux phases par crémage. Cette méthode consiste à étudier la dynamique de remontée d'une goutte de la phase supérieure lorsqu'elle est plongée dans la phase inférieure. Nous pouvons en effet induire optiquement un jet de la phase du haut dans celle du bas qui, en l'absence de champ laser, se brise en gouttes sous l'effet des forces capillaires (voir chapitre 4). En mesurant la vitesse v de remontée de ces gouttes ainsi que leurs rayons R , nous pouvons en déduire $\Delta\rho$ par la formule de Hadamard [72] :

$$v(R^2) = \frac{2\Delta\rho g}{3\eta_1} \left(\frac{\eta_1 + \eta_2}{2\eta_1 + 3\eta_2} \right) R^2 \quad (3.8)$$

où $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$ et η_k ($k = 1, 2$) sont les viscosités des deux phases.

La viscosité dynamique de la microémulsion de l'échantillon monophasique ($T < T_C$) a été mesurée expérimentalement par E. Freysz [73]

$$\eta(T) = [1.934 - 0.019(T(K) - 273)].10^{-3} Pa.s \quad (3.9)$$

Les fractions micellaires volumiques de l'échantillon diphasique sont assez faibles ($\Phi_k < 0.2$) pour considérer ce système comme un fluide newtonien et utiliser la relation d'Einstein, valable pour des sphères solides en suspension [74]. La dépendance des viscosités

dynamiques de chaque phase avec la température est alors extrapolée du comportement dans la région monophasique pour donner :

$$\eta_k(T) = [1.460 - 0.014(T(K) - 273)](1 + 2.5\Phi_k).10^{-3}Pa.s \quad (3.10)$$

Nos mesures expérimentales de contraste de masse volumique, présentées en figure 3.3, révèlent alors un comportement critique avec l'écart à la température critique dont l'exposant est très proche de celui du modèle présenté dans l'équation 3.7 et présente un bon accord avec la valeur $\Delta\Phi_0 = 0.275$. Rappelons que cette dernière valeur a été ajustée en comparant les résultats d'expériences et de simulations numériques de déformations d'interfaces fluides induites par laser [70], ce qui explique l'accord observé.

Des explications plus fournies sur la méthode de crémage sont présentées en annexe B.

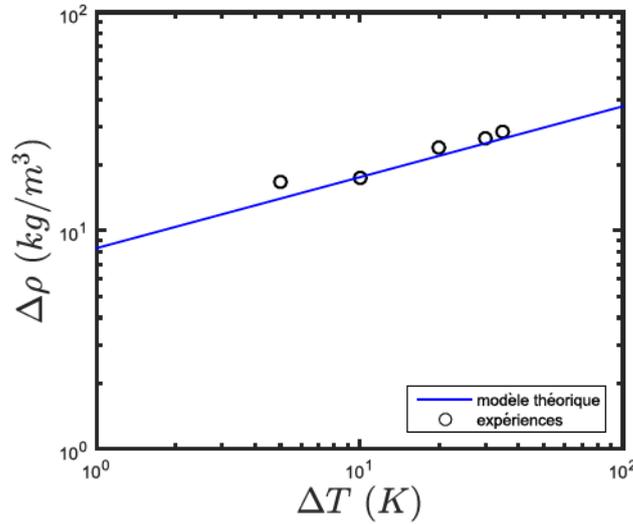


FIGURE 3.3 – Évolution du contraste de masse volumique entre les deux phases en fonction de l'écart à la température critique dans des microémulsions quasi-critiques. La courbe bleue correspond au modèle théorique $\Delta\rho = \Delta\rho_0 \left(\frac{T-T_c}{T_c}\right)^{0.325}$.

Tension interfaciale

En ajustant simplement l'écart à la température critique nous pouvons modifier les propriétés de l'interface entre les deux phases et rendre cette dernière très molle, ce qui reste l'avantage majeur de ce système fluide. La tension interfaciale varie en effet selon la loi de puissance :

$$\gamma = \gamma_0 \left(\frac{T - T_c}{T_c}\right)^{2\nu} \quad (3.11)$$

où l'exposant critique vaut $\nu = 0.63$ et γ_0 est l'amplitude critique de la tension interfaciale.

Dans le modèle du groupe de renormalisation ($d = 3, n = 1$), l'amplitude critique de la tension interfaciale γ_0 est reliée à la longueur de corrélation des fluctuations de densité ξ_0^+ et à la température critique T_C par le rapport universel :

$$R^+ = \frac{\gamma_0(\xi_0^+)^2}{k_B T_C} \quad (3.12)$$

De nombreux travaux expérimentaux [75, 76], notamment ceux de Moldover [77, 78], ont été réalisés dans différentes microémulsions afin de déterminer la valeur de ce rapport universel qui a ainsi été estimé en moyenne à $R^+ = 0.39$. Malgré l'existence d'autres valeurs du rapport universel R^+ annoncées dans la littérature, nous considérons dans notre modèle celle de Moldover comme étant la plus raisonnable (son étude expérimentale étant la plus complète). De plus des simulations de Monte-Carlo ont permis d'estimer une valeur de R^+ présentant un très bon accord avec celle de Moldover [79].

Dans notre système micellaire, la longueur de corrélation correspond au rayon moyen des micelles (estimée par diffusion de la lumière par E. Freysz [73]) : $\xi_0^+ = R_{micelle} = 40 \text{ \AA}$. En considérant $R^+ = 0.39$ et une température critique $T_C = 308\text{K}$, nous obtenons donc une amplitude critique $\gamma_0 \simeq 10^{-4}\text{N/m}$, ce qui montre bien que les tensions interfaciales mises en jeu dans ces systèmes micellaires sont très faibles. Par exemple pour un écart à la température critique de $\Delta T = T - T_C = 1\text{K}$ et $T_C = 308\text{K}$, la tension interfaciale vaut $\gamma = 7.3 \cdot 10^{-8} \text{ N/m}$ d'après la formule (3.11) soit 10^6 plus faible que la tension de surface de l'eau ($\gamma_{eau/air} = 72 \text{ mN/m}$). Il devient alors possible d'induire une déformation de l'interface liquide sous l'effet de la pression de radiation optique suffisamment importante pour être visualisée par microscopie classique.

L'incertitude qui existe sur la valeur du rapport universel R^+ nous a donc poussés à déterminer expérimentalement la tension interfaciale. Pour ce faire nous avons utilisé une méthode sans contact basée sur l'étude de la brisure d'une colonne liquide. Comme pour la méthode de crémage, nous induisons optiquement une colonne liquide de la phase supérieure dans la phase inférieure, qui se déstabilise ensuite et se brise en l'absence de faisceau laser (instabilité de Rayleigh-Plateau). En mesurant au cours du temps le rayon du cou où la colonne se brise, il est alors possible de déterminer la vitesse visqueuse de pincement et d'en déduire la tension interfaciale en utilisant les propriétés universelles de la dynamique de pincement [80] :

$$R(t) = H \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right) \frac{\gamma}{\eta_1} (t^* - t) \quad (3.13)$$

où $H \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right)$ est un facteur dépendant du rapport des viscosités, γ est la tension interfaciale et t^* correspond à l'instant auquel le cou se brise. Une description détaillée de la déter-

mination de la tension interfaciale par cette méthode est présentée en annexe C.

Nous voyons d'après la formule 3.13 que la dynamique de brisure est d'autant plus rapide que la tension interfaciale est élevée, il nous faut alors adapter la cadence d'acquisition afin de pouvoir mesurer le rayon du cou sur un nombre d'images suffisant. Cette méthode est donc parfaitement adaptée à la détermination de très faibles tensions interfaciales, pour lesquelles la dynamique est très lente.

En effectuant des mesures sur plusieurs brisures, nous pouvons alors déterminer une valeur moyenne de la tension interfaciale γ à partir de la pente des courbes $R(t)$ pour chaque écart à la température critique ΔT utilisé, ce qui est présenté sur la figure 3.4. Nos mesures expérimentales de la tension interfaciale présentent un comportement critique avec ΔT dont l'exposant est très proche de celui annoncé par le modèle théorique ($2\nu = 1.26$) mais avec une amplitude expérimentale de la tension interfaciale environ deux fois plus faible que la valeur attendue $\gamma_0 \simeq 10^{-4}$ N/m.

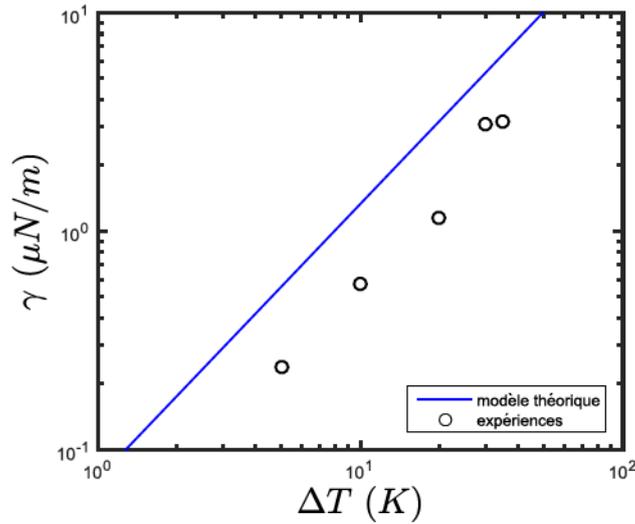


FIGURE 3.4 – Évolution de la tension interfaciale déterminées par brisure en fonction de l'écart à la température critique dans des microémulsions quasi-critiques. La courbe bleue correspond au modèle théorique $\gamma_0 \left(\frac{T-T_c}{T_c} \right)^{1.26}$.

Nous pouvons tout d'abord penser que la différence observée provient d'une erreur sur l'estimation expérimentale des tensions interfaciales. Dans ce schéma, une mauvaise estimation des viscosités, intervenant dans l'expression de la dynamique de pincement et qui sont calculées à partir de l'équation 3.10, pourrait conduire à une sous-estimation de γ . Cependant, l'accord obtenu entre expérience et théorie pour le contraste de densité $\Delta\rho$ valide d'une certaine manière les valeurs de viscosités utilisées, ces dernières intervenant dans la formule de Hadamard. De plus, une erreur d'un facteur 2 pour le coefficient H ou

les rayons de cou mesurés $R(t)$ n'est pas envisageable. Ainsi les incertitudes expérimentales ne permettent pas d'expliquer le facteur 2 observé entre expérience et théorie. Nous pouvons alors supposer que soit la valeur du rapport universel $R^+ = 0.39$ annoncée par Moldover ne s'applique pas à notre système fluide soit que la longueur de corrélation des fluctuations de densité ne vaut pas ici $\xi_0^+ = 40 \text{ \AA}$, ou encore une combinaison des deux. Par exemple, en supposant que $\xi_0^{+ \text{ exp}} = 45 \text{ \AA}$, l'équation 3.12 conduit alors à $R_{\text{exp}}^+ \simeq 0.24$ en considérant l'amplitude expérimentale $\gamma_0^{\text{exp}} \simeq 0.5 \times 10^{-4} \text{ N/m}$.

La détermination de la tension interfaciale γ pour nos systèmes est assez délicate étant donné l'extrême faiblesse des valeurs mises en jeu ($\gamma \sim 10^{-6} \text{ N/m}$ typiquement). La détermination de cette dernière par des méthodes sans contact fera l'objet d'une étude détaillée dans le chapitre 4.

Turbidité des échantillons

Comme nous l'avons vu précédemment, notre échantillon est constitué de deux phases homogènes contenant des micelles inverses qui agissent comme des inhomogénéités d'indice de réfraction. Lorsqu'un faisceau laser traverse notre échantillon, la lumière subit alors des diffusions élastiques sur ces inhomogénéités. Cette diffusion atténue l'intensité de l'onde incidente au cours de sa propagation et conduit à l'établissement d'écoulements permanents dans le volume par conservation de la quantité de mouvement au sein du système lumière-fluide. Dans le cas d'un système de basse tension interfaciale, ces écoulements orientés dans le sens de propagation de l'onde incidente engendrent alors des contraintes visqueuses à l'interface qui peuvent déformer celle-ci, comme illustré sur la figure 3.5 extraite de [70].

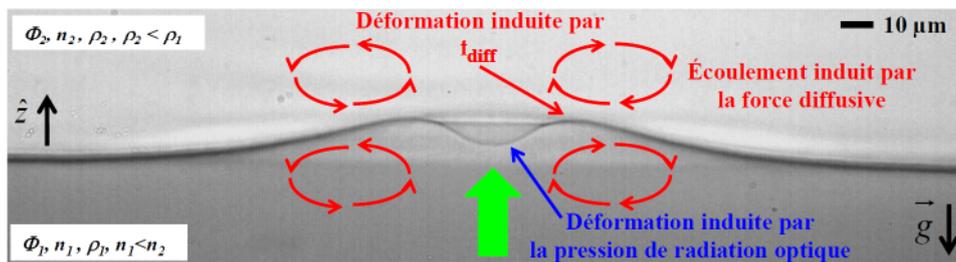


FIGURE 3.5 – Illustration de la déformation d'une interface molle de microémulsions quasi-critiques induite par les contraintes visqueuses et la recirculation du fluide dues à la diffusion de la lumière. Dans cet exemple, le faisceau laser de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 9.8 \mu\text{m}$ et de puissance $P = 1 \text{ W}$ se propage de façon ascendante (depuis la phase la moins réfringente). Issue de [70].

La force volumique résultant de ce transfert de quantité de mouvement, appelée force

diffusive, est dirigée dans le sens de propagation du faisceau incident et s'exprime par :

$$\overrightarrow{f_{diff}}(\overrightarrow{r}, t) = \frac{\tau n}{c} \langle \overrightarrow{S} \rangle \quad (3.14)$$

où τ est la turbidité du milieu représentant l'atténuation de l'intensité incidente $I(z)$ par les diffuseurs (micelles) et s'exprimant par $\tau = -\frac{1}{I(z)} \frac{dI(z)}{dz}$ [74], n est l'indice du milieu homogène, c est la vitesse de la lumière dans le vide et $\langle \overrightarrow{S} \rangle$ est la moyenne temporelle du vecteur de Poynting ($\overrightarrow{S} = I(r)\hat{z}$).

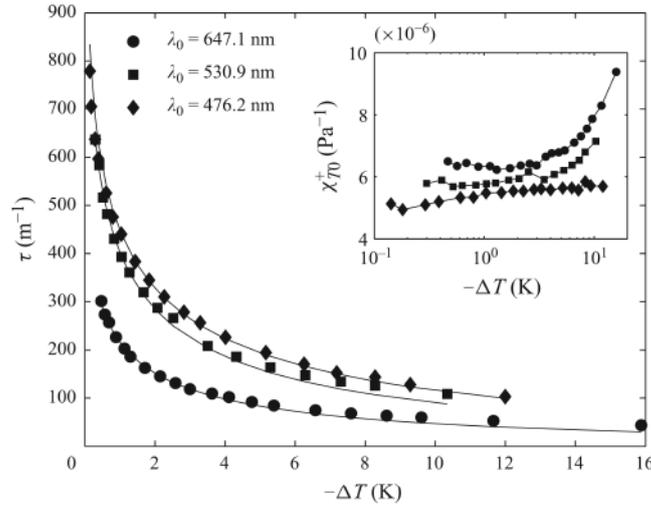


FIGURE 3.6 – *Mesure expérimentale de la turbidité dans une microémulsion quasi-critique monophasique ($T < T_C$) en fonction de l'écart à la température critique. Chaque symbole correspond à une longueur d'onde de lumière incidente différente. Issue de [73].*

La turbidité τ dans des phases de microémulsions quasi-critiques, de composition très proche de celle utilisée, a été mesurée expérimentalement pour $T < T_C$ à différentes longueurs d'onde par E. Freysz [73]. La susceptibilité osmotique χ_T , qui est proportionnelle à τ , évolue de manière symétrique par rapport au point critique (à un facteur numérique d'amplitude près), il en est donc de même pour la turbidité. Ainsi en s'éloignant du point critique la turbidité des phases micellaires, et donc l'amplitude de la force diffusive, diminuent.

Cela justifie également notre gamme d'écart à la température critique, le but étant de ne considérer des déformations d'interfaces induites uniquement par pression de radiation optique.

Réalisation des échantillons

Les microémulsions quasi-critiques considérées dans cette thèse sont constituées d'un mélange de toluène (majoritairement), d'eau ultrapure, de SDS (Sodium Dodécyl Sulfate) et de n-Butanol-1 comme co-surfactant. Cette composition, issue des travaux de A.

Casner [81], a été choisie de telle manière à obtenir une température critique d'environ $T_C = 308\text{K}$ (soit 35°C). Afin de réaliser notre échantillon, nous préparons 60g de solution mère que nous répartissons dans 5 tubes à essais. Nous réalisons ensuite une ligne de dilution en ajoutant dans chaque tube une quantité différente de toluène (de l'ordre de quelques dixièmes de g). Nous obtenons alors 5 tubes contenant des solutions de composition légèrement différente et qui traversent en composition la courbe de coexistence au point critique. Elles démixtent donc à des températures différentes (toujours proches de $T_C = 308\text{K}$) lorsqu'on les place dans un bain thermostaté. Après démixtion pour certaines compositions, les volumes respectifs des deux phases diffèrent d'un tube à l'autre : les solutions les moins riches en toluène possèdent une phase inférieure de plus grand volume que la phase supérieure et inversement pour les solutions les plus riches en toluène. La détermination de l'échantillon critique passe donc par la recherche de la température critique de démixtion et la mesure du volume des deux phases pour chaque tube démixté. L'échantillon critique correspond à celui démixtant en deux phases de volumes égaux à une température fixée tout en étant monophasique pour une température très légèrement inférieure, et constituera notre système d'étude. Une fois cette échantillon critique trouvé, nous remplissons alors plusieurs cellules spectroscopiques Hellma[®] de 2mm d'épaisseur avec ce dernier.

3.1.2 Équilibres de phases de Winsor

Afin de nous affranchir des forces diffusives présentes dans les microémulsions quasi-critiques, et d'obtenir un contraste d'indices optiques plus élevé, nous avons également utilisé un autre système fluide : les phases de Winsor. Ce système fluide, décrit dans les années 1940 par P.A Winsor [82], est un mélange de saumure (eau salée), d'un surfactant et d'huile .

Le comportement des molécules tensioactives dans le mélange résulte d'une compétition entre le caractère hydrophobe de leur chaîne carbonée et les interactions électrostatiques de leur tête polaire. Ainsi la variation de salinité dans la solution permet de modifier la balance hydrophile/hydrophobe (*HLB : HydrophilicLipophilic Balance*) du surfactant par écrantage et engendre l'apparition de différents équilibres de phases de Winsor, comme nous pouvons l'observer sur la figure 3.7 pour un système modèle composée d'eau salée, d'AOT et d'un n-alcane [83]. Pour de faibles concentrations en sel, nous rencontrons un équilibre diphasique, appelé Winsor I, entre une microémulsion de micelles directes (d'huile dans l'eau) et une phase d'huile en excès. Pour de fortes concentrations en sel, nous rencontrons à nouveau un système diphasique, appelé Winsor II, dans lequel une phase d'eau en excès est en équilibre avec une microémulsion de micelles inverses (d'eau dans l'huile). Ces deux équilibres de Winsor présentent donc une phase diffusante

de microémulsion en contact avec une phase transparente (le surfactant y est présent à la c.m.c, concentration micellaire critique). Enfin, pour des concentrations intermédiaires en sel, nous obtenons un équilibre triphasique dit de Winsor III. Celui-ci est composé d'une phase lamellaire L_α ou d'une phase éponge L_3 , riches en surfactant, comprise entre une phase eau et une phase huile toutes deux en excès et à la concentration micellaire critique (c.m.c).

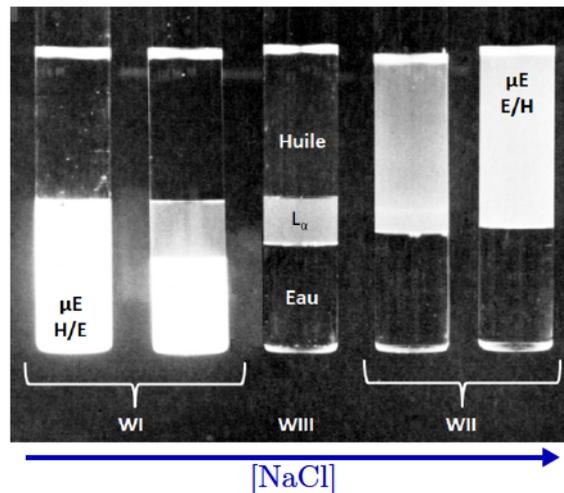


FIGURE 3.7 – Représentation des différents équilibres de Winsor obtenus par variation de la salinité. Nous pouvons nettement distinguer les phases diffusantes dans ces équilibres. Issue de [83].

L'ajout de sel en solution permet donc d'inverser la courbure spontanée de la monocouche de surfactant pour former des micelles directes aux faibles salinités, des phases lamellaires (ou éponge) aux salinités intermédiaires puis des micelles inverses pour les concentrations en sel les plus élevées.

Réalisation des échantillons

Au cours de cette thèse, nous avons été amenés à utiliser deux compositions différentes afin de réaliser nos phases de Winsor, le but étant encore une fois de faire varier le contraste d'indices de réfraction Δn entre les deux phases. La première composition, basée sur les travaux de Aveyard et al. [84, 85, 86, 87], est constituée de saumure, de n-heptane et d'AOT (Aerosol-OT). Il s'agit de la même composition que celle utilisée par J. Petit durant ses travaux de thèse [70], ce qui nous permet une comparaison plus facile des résultats de déformations d'interfaces. La seconde composition, issue des travaux de Pouchelon et al. dans les années 1980 [88, 89, 90], utilise du toluène, du SDS (Sodium Dodecyl Sulfate) et du butanol jouant le rôle de co-surfactant (comme dans les microémulsions quasi-critiques).

Afin de réaliser nos phases de Winsor, nous préparons une solution aqueuse de forte salinité contenant du surfactant que nous diluons ensuite dans 6 tubes à essais avec une solution non salée de même concentration en surfactant. Nous ajoutons ensuite la même quantité d'huile (et d'alcool) dans les différents tubes à essais. Nous obtenons alors une ligne de 6 tubes à essais de même concentration en surfactant mais de salinité différente. Nous balayons ainsi le diagramme de phases afin d'obtenir les différents équilibres de Winsor ce qui nous permet d'anticiper tout "décalage" du diagramme, ces systèmes fluides étant très sensibles aux impuretés et donc aux lots de produits chimiques utilisés. L'obtention de ces phases en équilibre de Winsor requiert de un à plusieurs mois.

Le but étant d'obtenir des interfaces très déformables, nous cherchons les systèmes présentant les tensions interfaciales les plus basses possibles, qui correspondent le plus souvent aux solutions composées d'alcane courts. Les tensions interfaciales présentées en figure 3.8 ont été mesurées expérimentalement par méthode de la goutte tournante dans le cas des phases de Winsor à l'heptane [87] et par diffusion de la lumière [88] pour les phases de Winsor au toluène. Pour les deux compositions utilisées (à base d'heptane ou de toluène), il convient de considérer les équilibres de Winsor III correspondant aux salinités intermédiaires. Cela correspond donc à des salinités d'environ 0.05 mol/L pour des phases de Winsor préparées à l'heptane et d'environ 6% massique pour des phases de Winsor au toluène.

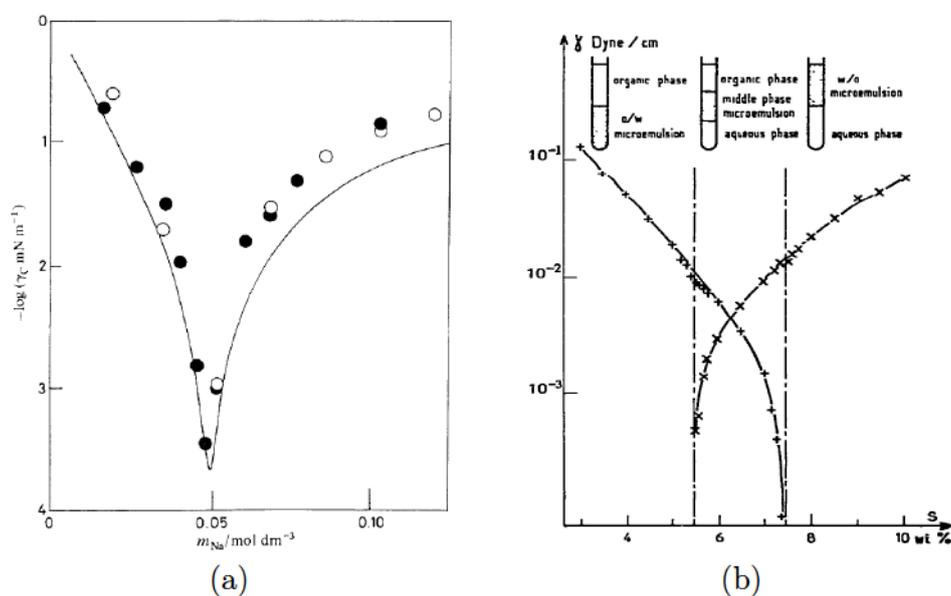


FIGURE 3.8 – (a) Variation de la tension interfaciale en fonction de la salinité dans des phases de Winsor à l'heptane en équilibre (symboles creux) et non-équilibrées (symboles pleins). Issue de [84]. (b) Variation de la tension interfaciale en fonction de la salinité dans des phases de Winsor au toluène. Issue de [88].

De plus, nous cherchons un système fluide transparent pour ne considérer que les

effets de pression de radiation optique et proscrire tout phénomène associé aux forces diffusives ou au chauffage laser potentiel. L'équilibre de Winsor III qui nous intéresse est triphasique et présente une phase lamellaire L_{α} très diffusante. Il convient donc de prélever cette dernière pour ne conserver que les phases transparentes d'excès d'eau et d'huile qui constitueront notre échantillon. Le prélèvement est réalisé à l'aide de seringues dédiées à chaque phase pour éviter toutes perturbations des concentrations. Après prélèvement, nous remplissons plusieurs cellules spectroscopiques Hellma® de 2mm d'épaisseur avec les différentes phases. Le remplissage doit être effectué avec la plus grande délicatesse afin d'éviter la formation de mousse à l'interface et de ne pas perturber l'équilibre des phases. En effet, ces systèmes sont extrêmement sensibles aux perturbations de leur état d'équilibre. Notre échantillon consiste alors en une interface molle entre les phases eau et huile, toutes deux transparentes.

Caractérisation expérimentale des échantillons

Contrairement aux microémulsions quasi-critiques, il est possible d'étudier les deux phases séparément dans le cas des équilibres de Winsor (ces dernières étant prélevées séparément avec des seringues). Cela est rendu possible par l'utilisation de surfactant ionique qui rend le comportement de ce système indépendant de la température. Cependant, les volumes considérés ici sont très faibles (quelques centaines de μL) ce qui nous amène à privilégier de nouveau les méthodes *in situ* et sans contact.

La détermination du contraste de masse volumique $\Delta\rho$ et de la tension interfaciale γ a été réalisée respectivement par les méthodes de crémage et de la brisure précédemment décrites pour nos phases micellaires. Les résultats de notre caractérisation expérimentale sont regroupés dans le tableau 3.1 présenté dans la partie suivante. Malgré la présence de surfactant (et de sel), qui conduit à des tensions interfaciales très faibles, nous remarquons que le contraste de masse volumique mesuré ici est très proche de celui qui existe entre l'eau et l'huile (heptane ou toluène). De plus, les valeurs de $\Delta\rho$ et γ déterminées ici sont en très bon accord avec celles obtenues par A. Pouchelon lors de ses travaux de thèse [91]. Nous avons d'ailleurs considéré ses valeurs de viscosités pour la détermination du contraste de masse volumique et de la tension interfaciale.

Afin de déterminer les indices de réfraction n_k dans nos différentes phases de Winsor, nous avons cette fois-ci simplement utilisé un réfractomètre d'Abbe, ce qui permet une mesure directe des indices. Le réfractomètre est associé à un filtre à $\lambda_{\text{filtre}} = 500 \text{ nm}$, ce qui est proche de la longueur d'onde du laser utilisé dans nos expériences ($\lambda = 532 \text{ nm}$). Nous remarquons encore une fois que les indices de réfraction sont assez peu modifiés par la présence de surfactant et de sel par rapport aux constituants "purs".

3.1.3 Récapitulatif des caractéristiques de nos échantillons

Par soucis de clarté, nous récapitulons ici les résultats de la caractérisation expérimentale réalisée pour chacun de nos systèmes fluides. Dans le tableau ci-dessous sont regroupées les valeurs des indices optiques de nos échantillons diphasiques, des contrastes d'indices associés, des contrastes de masse volumique ainsi que des tensions interfaciales déterminées par brisure.

Nous avons utilisé une seule salinité dans le cas des phases de Winsor préparées avec de l'heptane ($S = 0.040$ mol/L). Nous ne précisons donc pas la salinité pour cet échantillon dans la suite du manuscrit. Dans le cas des phases de Winsor préparées avec du toluène, nous avons utilisé deux salinités différentes que nous préciserons à chaque fois.

Système fluide	n_1	n_2	$\Delta n = n_2 - n_1$	$\Delta\rho$ (kg/m ³)	γ ($\mu\text{N/m}$)
$\mu\text{E } \Delta T = 5\text{K}$	1.4460	1.4589	0.0129	16.75	0.238
$\mu\text{E } \Delta T = 10\text{K}$	1.4419	1.4574	0.0155	17.45	0.571
$\mu\text{E } \Delta T = 20\text{K}$	1.4345	1.4535	0.0190	24.09	1.15
$\mu\text{E } \Delta T = 30\text{K}$	1.4275	1.4490	0.0215	26.46	3.08
$\mu\text{E } \Delta T = 35\text{K}$	1.4242	1.4466	0.0224	28.31	3.17
WIII heptane	1.3325	1.3875	0.0550	321	3.38
WIII toluène ($S = 6.5\%wt$)	1.3456	1.4895	0.1439	149.94	11.11
WIII toluène ($S = 6.0\%wt$)	1.3448	1.4897	0.1449	139.32	13.34

TABLE 3.1 – *Propriétés physiques de chaque système fluide utilisé.*

3.2 Montage expérimental de déformation d'interfaces planes

3.2.1 Montage et acquisitions

Trajet optique du faisceau laser

Le dispositif expérimental, développé par J. Petit durant sa thèse [70], est présenté sur la photographie en figure 3.9a. Ce dispositif est composé de différents éléments optiques qui permettent de focaliser un faisceau laser continu sur une interface liquide plane dans le but de la déformer optiquement. Le faisceau laser, de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm (longueur d'onde dans le vert), est issu d'un laser Nd³⁺:YAG continu doublé en fréquence et présente un mode gaussien de type TEM₀₀ avec un facteur $M^2 = 1.1$.

Le faisceau laser traverse tout d'abord une lame demi-onde qui permet de tourner la polarisation de l'onde, qui est initialement linéaire verticale en sortie de laser, avant de traverser ensuite une lentille de distance focale $f = 800\text{mm}$. Cette dernière focalise le faisceau et permet, par couplage au prisme P_r , de choisir la gamme de variation de rayon au col du faisceau ω_0 . La position de cette lentille étant fixée, nous ajustons la valeur de ω_0 par simple translation du prisme P_r . En sortie de ce prisme, l'onde atteint un cube séparateur (CS) qui permet de choisir la voie du montage privilégiée en fonction de la polarisation. En effet, en tournant la lame demi-onde de 45° , la polarisation de l'onde incidente devient alors linéaire horizontale ce qui permet de propager le faisceau par la voie haute du montage par réflexion dans le cube séparateur. En revanche, lorsque la lame demi-onde ne subit pas de rotation, le faisceau laser traverse le cube séparateur sans être dévié et parcourt la voie basse du dispositif expérimental. Dans toutes nos expériences, nous avons considéré uniquement la voie haute du montage. Le faisceau laser se propage alors toujours de la phase la plus réfringente (d'indice optique n_2) vers la phase moins réfringente (d'indice optique n_1), comme schématisé sur la figure 3.9b.

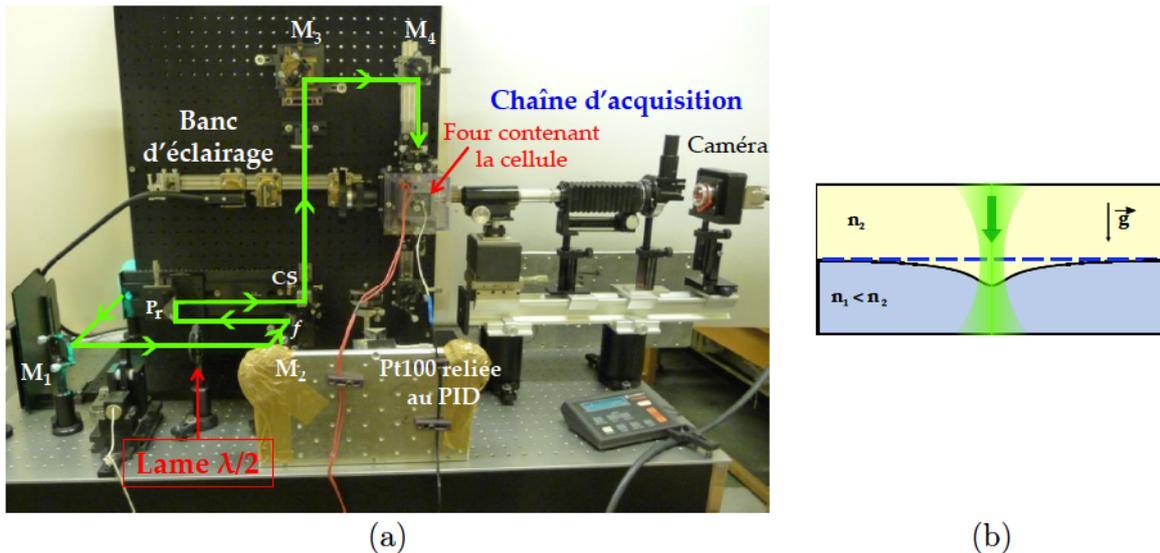


FIGURE 3.9 – (a) Photographie du montage expérimental de déformations d'interfaces planes. Le trajet du faisceau laser est matérialisé par les flèches vertes. Issue de [70]. (b) Schéma de principe de l'expérience de déformation d'interfaces liquides par laser.

La focalisation du faisceau laser au niveau de l'interface liquide entre les deux phases de l'échantillon est assurée par un objectif de microscope. L'objectif de focalisation utilisé est de marque Olympus® et de grandissement $\times 10$ (ouverture numérique $N.A = 0.25$ et longueur de travail $W.D = 21\text{ mm}$)

3.2.2 Caractérisation du faisceau

Pertes en intensité

Après passage à travers les différents éléments optiques du montage, le faisceau laser subit de nombreuses pertes en intensité. Ces pertes sont alors caractérisées par un coefficient de transmission du faisceau incident qui a été évalué au niveau de l'interface (i.e. au centre de la cellule). La puissance laser à l'interface est donc :

$$P = 0.644 \times P_{\text{boitier}} \quad (3.15)$$

Taille du faisceau incident

Le faisceau laser incident présente un mode gaussien TEM₀₀ dont le profil d'intensité s'exprime par :

$$I(r, z) = \frac{2P}{\pi\omega^2(z)} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right) \quad (3.16)$$

où P et $\omega(z)$ sont respectivement la puissance et le rayon du faisceau laser incident.

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda_0 z}{n_k \pi \omega_0^2}\right)^2} \quad (3.17)$$

où $\omega_0 = \omega(z = 0)$ est le rayon au col du faisceau (que nous appellerons *waist* par la suite) et z_R est la longueur de Rayleigh. Dans nos expériences $z = 0$ correspond à la position de l'interface liquide non déformée, le faisceau laser étant focalisé sur celle-ci.

Afin de connaître précisément la taille caractéristique de l'excitation au niveau de l'interface liquide, nous devons donc déterminer le *waist* ω_0 du faisceau incident. Pour cela nous avons utilisé un détecteur mesurant le profil d'intensité du faisceau (*beam profiler*), associé à un logiciel qui permet de déduire les caractéristiques de ce faisceau, notamment sa taille. La démarche consiste alors à mesurer le diamètre du faisceau dans l'air (sans échantillon) après l'objectif de focalisation O_1 à différentes distances z_D de ce dernier (le faisceau laser incident étant focalisé à une distance $z_0 < z_D$ de l'objectif O_1). Un schéma de principe de l'expérience est présenté en figure 3.10a. Les distances z_D entre l'objectif de focalisation et le détecteur, de l'ordre de quelques centimètres, ont été choisies de telle manière à ce que $z_D \gg z_R$ (\sim qq 100 μ m). Dans ces conditions, l'équation (3.17) devient linéaire :

$$\omega(z) = \frac{\lambda_0 z}{n_k \pi \omega_0} \quad (3.18)$$

avec $z = z_D - z_0$ ce qui conduit à :

$$\omega(z_D) = \frac{\lambda_0}{n_k \pi \omega_0} z_D - \frac{\lambda_0 z_0}{n_k \pi \omega_0} \quad (3.19)$$

À partir de nos mesures de la taille du faisceau $\omega(z_D)$, il est alors possible d'en déduire les caractéristiques du faisceau incident. En effet, la courbe représentant $\omega(z_D)$ est une droite dont la pente est inversement proportionnelle au *waist* ω_0 . De plus le rapport de l'ordonnée à l'origine et de la pente de la droite obtenue nous permet de déterminer la distance z_0 séparant la sortie de l'objectif du *waist*. Rappelons que nous pouvons faire varier la taille ω_0 du faisceau par simple translation du prisme P_r . Nous devons donc effectuer cette caractérisation du faisceau pour les différentes positions de P_r , notées x_{prisme} .

Un exemple de mesure de la taille du faisceau en fonction de la distance z_D est présenté en figure 3.10b pour $x_{prisme} = 17$ cm et $P_{boitier} = 50$ mW. Comme nous le remarquons sur cette figure, le faisceau est légèrement elliptique et peut donc être caractérisé par un *waist* $\omega_{0,a}$ suivant son grand axe et $\omega_{0,b}$ suivant son petit axe. Nous définissons alors la taille du faisceau ω_0 comme la moyenne géométrique de $\omega_{0,a}$ et $\omega_{0,b}$. Dans cet exemple, nous trouvons alors (d'après 3.19) $\omega_{0,a} = 5.29\mu\text{m}$ et $\omega_{0,b} = 5.89\mu\text{m}$ ce qui conduit à $\omega_0 = 5.58\mu\text{m}$.

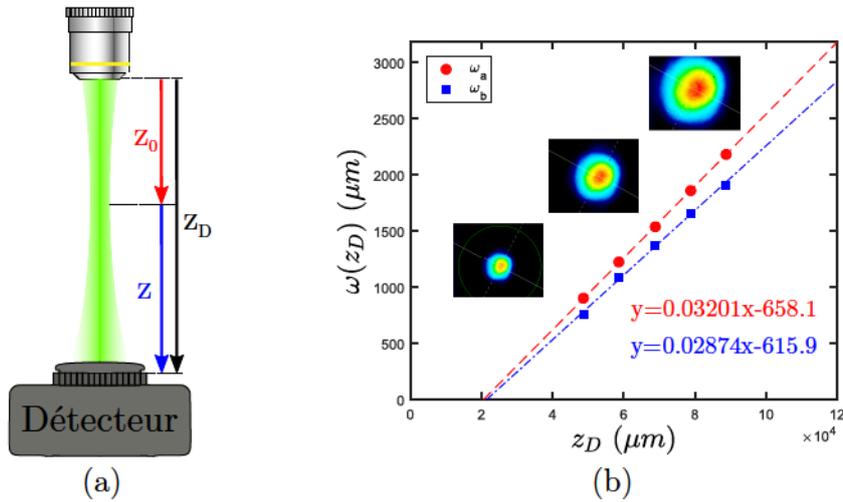


FIGURE 3.10 – (a) Schéma de principe de détermination expérimentale de la taille du faisceau laser. Un détecteur placé à une distance z_D de l'objectif de microscope mesure la taille du faisceau laser focalisé à une distance z_0 de ce dernier. (b) Exemple d'une série de mesure de la taille du faisceau perçu par le détecteur en fonction de la position z_D de ce dernier. La puissance correspondante est $P_{boitier} = 50$ mW et la position du prisme est $x_{prisme} = 17$ cm

Des mesures préliminaires effectuées en sortie du boitier laser ont révélé une dépendance de la taille du faisceau avec la puissance laser. Nous observons en effet une variation de taille de faisceau de l'ordre de 20% entre les basses et fortes puissances ($0.01 \text{ W} < P_{boitier} < 5.5 \text{ W}$). Cette observation nous a donc conduit à effectuer nos mesures de taille de faisceau $\omega(z_D)$ en fonction de la puissance laser, et cela pour chaque position du prisme.

3.2. MONTAGE EXPÉRIMENTAL DE DÉFORMATION D'INTERFACES PLANES

En appliquant la méthode de détermination de ω_0 précédemment décrite, nos mesures révèlent ainsi une amplification de la dépendance de la taille du faisceau avec la puissance laser par les différents éléments optiques du montage (voir figure 3.11a). En effet, la taille ω_0 du faisceau incident sur l'échantillon peut varier jusqu'à 80% entre les basses et fortes puissances. De plus, le *waist* du faisceau focalisé est d'autant plus petit que le trajet optique dans le montage est long, donc que x_{prisme} est grand. Pour chaque position du prisme, la taille du faisceau peut ainsi être décrite par une fonction *ad-hoc* :

$$\omega_0(P) = \omega_0(0) \times (1 + g(P)) \quad (3.20)$$

où $\omega_0(0)$ correspond à la valeur du *waist* extrapolée à puissance laser nulle et $g(P)$ est une fonction polynôme croissante dépendant de P .

À partir de nos mesures expérimentales, nous obtenons alors un abaque empirique nous permettant de connaître le *waist* ω_0 en fonction de la position du prisme et de la puissance laser (voir figure 3.11b). Le *waist* du faisceau est compris dans une gamme comprise entre $\omega_0 = 2.89 \mu\text{m}$ à $\omega_0 = 18.44 \mu\text{m}$ suivant les paramètres choisis (x_{prisme} et $P_{boitier}$).

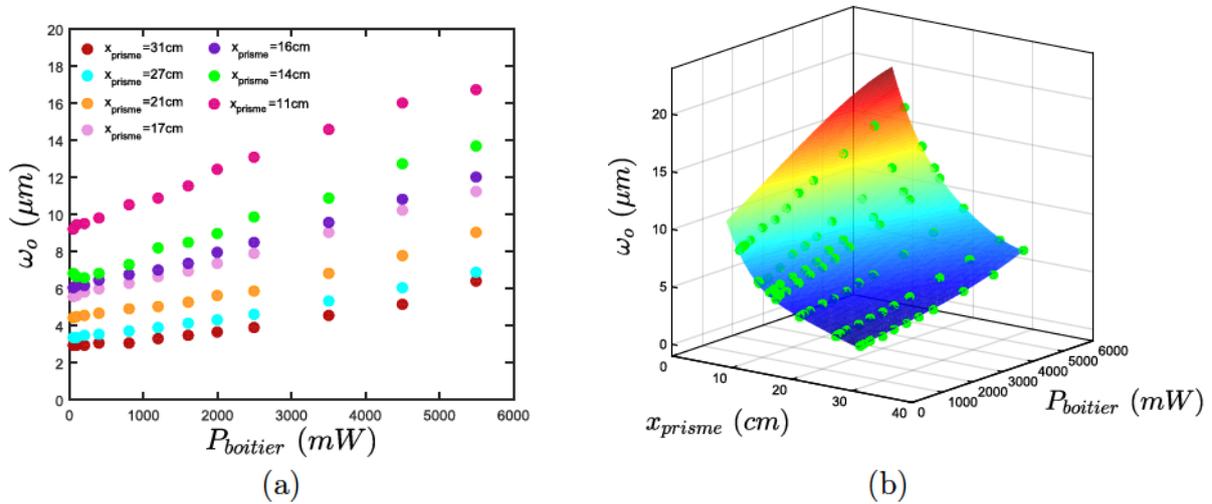


FIGURE 3.11 – (a) Évolution du *waist* ω_0 du faisceau en fonction de la puissance du boitier laser pour différentes positions de prisme. (b) Abaque expérimentale représentant *waist* ω_0 en fonction de la position du prisme et de la puissance du boitier laser. Les points verts correspondent aux mesures expérimentales et la surface colorée est un ajustement de ces mesures.

Contrôle en température

Comme nous l'avons vu précédemment, les systèmes fluides considérés nécessitent un contrôle thermique précis (notamment les microémulsions quasi-critiques). L'échantillon,

contenu dans une cellule spectroscopique fermée, est alors placé dans un four qui assure la thermalisation la plus homogène possible de ce dernier. Le four est constitué d'un bloc de laiton dans lequel quatre résistances chauffantes contrôlées par PID sont disposées. Une sonde platine Pt100 reliée à ce contrôleur PID permet de mesurer la température au niveau de l'échantillon et ainsi d'ajuster cette dernière par rétroaction si besoin. Le bloc de laiton est entouré de PVC de conductivité thermique moindre et donc se comportant comme une couche isolante, lui-même contenu dans une boîte de plexiglas transparent dans laquelle des tuyaux parcourus une circulation d'eau de température contrôlée assure un premier étage de température constante (afin d'éliminer les fluctuations lentes).

Acquisition des images

Afin de réaliser nos acquisitions, l'échantillon est éclairé perpendiculairement au faisceau laser par une lampe fibrée qui est focalisée par un condenseur placé avant l'échantillon. La chaîne d'acquisition des images se compose d'un objectif de microscope de grande distance de travail, d'un filtre coloré orange occultant la diffusion du faisceau laser vert dans le milieu et enfin d'une caméra reliée à un ordinateur. La translation de la caméra sur un banc optique permet d'ajuster le grandissement de l'image.

Durant cette thèse, nous avons utilisé deux caméras : une caméra CCD (de marque Andor[®]) et une caméra rapide (de marque DRS[®]) de type CMOS. Cette dernière nous a notamment permis d'observer la dynamique rapide d'une brisure de colonne liquide et d'accroître la résolution temporelle dans les expériences de crémage.

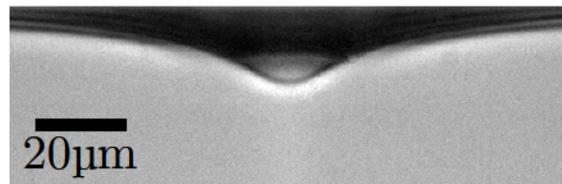


FIGURE 3.12 – Image typique de déformation d'une interface liquide dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 35K$. La puissance laser et la taille du faisceau sont respectivement $P = 2.54 W$ et $\omega_0 = 8.40 \mu m$.

Afin de réaliser une image la plus nette possible, il faut prendre soin de focaliser le laser sur l'interface liquide à une distance adaptée par rapport au bord de la cellule. En effet, en focalisant le faisceau laser trop loin ou trop proche de la paroi de la cellule, il devient alors compliqué d'imager correctement l'interface à cause, respectivement, de la turbidité des phases (pour les microémulsions) ou de la présence du ménisque mouillant la paroi et de sa courbure (pour les microémulsions loin du point critique et pour les phases de Winsor).

Une image typique de déformation d'une interface liquide par laser est présentée en figure

3.2. MONTAGE EXPÉRIMENTAL DE DÉFORMATION D'INTERFACES PLANES

3.12. Les films et images ainsi obtenus sont traités par la suite avec les logiciels ImageJ et MATLAB®.

Chapitre 4

Détermination sans contact de très faibles tensions interfaciales

Ce chapitre est dédié aux résultats de déformations d'interfaces liquides molles induites par pression de radiation optique. Nous considérons ici l'action d'un faisceau laser continu de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532nm$ (issu d'un laser Nd^{3+} :YAG) sur différents systèmes fluides diphasiques de faible tension interfaciale : des microémulsions quasi-critiques ainsi que des phases de Winsor synthétisées avec de l'heptane ou du toluène. Dans toutes nos expériences, le faisceau laser incident est focalisé à l'interface liquide-liquide et se propage de la phase la plus réfringente vers la moins réfringente (de haut en bas pour tous nos systèmes).

Nous allons présenter dans ce chapitre les différentes morphologies observées selon la puissance laser appliquée et montrer comment il est possible d'utiliser ces déformations d'interfaces comme outil sans contact pour la détermination de très basses tensions interfaciales, lorsque beaucoup de méthodes deviennent inopérantes.

4.1 Déformation d'interfaces liquides sous faible excitation laser

4.1.1 Régime linéaire de déformation

Une interface liquide molle se déforme sous l'effet de la pression de radiation optique du faisceau laser incident. Cette déformation, assimilable à une bosse pour de faibles puissances laser, est toujours orientée vers le milieu d'indice optique le plus faible (ici vers le bas), comme nous l'avons montré au chapitre 2. Des images de déformations typiques d'interfaces liquides induites à différentes puissances sont présentées en figure 4.1, pour les différents systèmes fluides utilisés : microémulsions quasi-critiques et phases de Win-

4.1. DÉFORMATION D'INTERFACES LIQUIDES SOUS FAIBLE EXCITATION LASER

sur à l'heptane et au toluène. Comme nous le constatons sur cette figure, pour chaque système fluide utilisé, l'amplitude de ces déformations est d'autant plus importante que la puissance appliquée à l'interface est élevée. De plus en comparant ces différentes séries d'images, nous remarquons également la dépendance de la forme des déformations observées vis-à-vis de la taille du faisceau incident, la largeur de celles-ci semblant directement liée à la taille ω_0 de l'excitation.

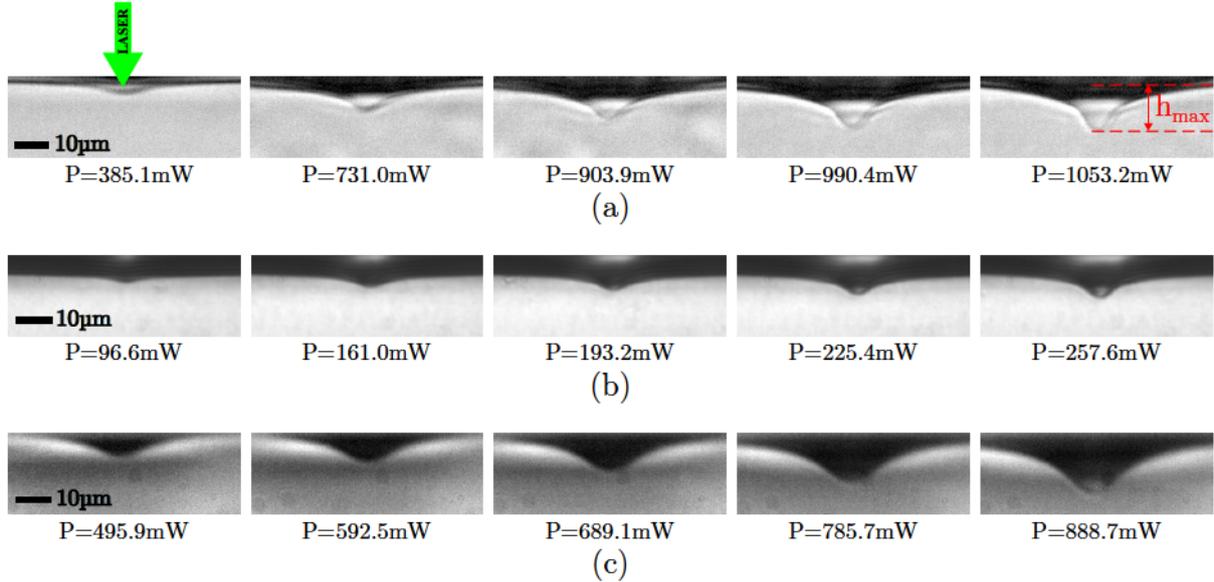


FIGURE 4.1 – Déformations d'interfaces liquides induites par laser à puissances modérées dans : (a) des microémulsions quasi-critiques à $T - T_C = 20K$ pour $\omega_0 = 4.47\mu m$, (b) des phases de Winsor à l'heptane pour $\omega_0 = 3.00\mu m$, (c) des phases de Winsor au toluène $\omega_0 = 7.47\mu m$.

Dans le but de caractériser de façon quantitative les déformations d'interfaces liquides induites aux faibles excitations laser, nous avons mesuré la hauteur maximale h_{max} de déformation de l'interface en fonction de la puissance incidente. Dans ces mesures, l'altitude maximale h_{max} atteinte par la déformation est déterminée par rapport à la position de référence $z = 0$ de l'interface initialement au repos (non déformée en l'absence de laser), l'axe z étant choisi vertical et orienté vers le bas. La figure 4.2 présente les résultats de mesures de h_{max} en fonction de la puissance laser correspondant aux séries d'images présentées en figure 4.1. Nous mettons ici en évidence l'existence d'un régime particulier de déformation, pour lequel la hauteur maximale h_{max} augmente linéairement avec la puissance P .

Il est intéressant de remarquer que ce régime linéaire existe quelle que soit la nature du système fluide utilisé, que ce soit des microémulsions quasi-critiques ou des phases de Winsor à l'heptane ou au toluène. En effet les phases micellaires de microémulsions sont, par essence, des systèmes diffusants dans lesquels des écoulements permanents dans le volume s'établissent engendrant ainsi des contraintes visqueuses à l'interface capables de déformer celle-ci (voir partie 3.1.1 pour plus de détails). Dans de tels systèmes, à la

fois la pression de radiation optique et les effets diffusifs participent à la déformation de l'interface. En revanche les phases de Winsor constituent un système transparent pour lesquels seuls les effets de pression de radiation optique sont en jeu. Nous montrons donc que ce régime linéaire existe en présence ou non d'effets diffusifs. Notons que ces effets diffusifs sont relativement peu importants dans cette gamme de puissance laser et que nous travaillons avec des phases micellaires de microémulsions loin de la température critique afin justement de limiter l'amplitude de la force diffusive.

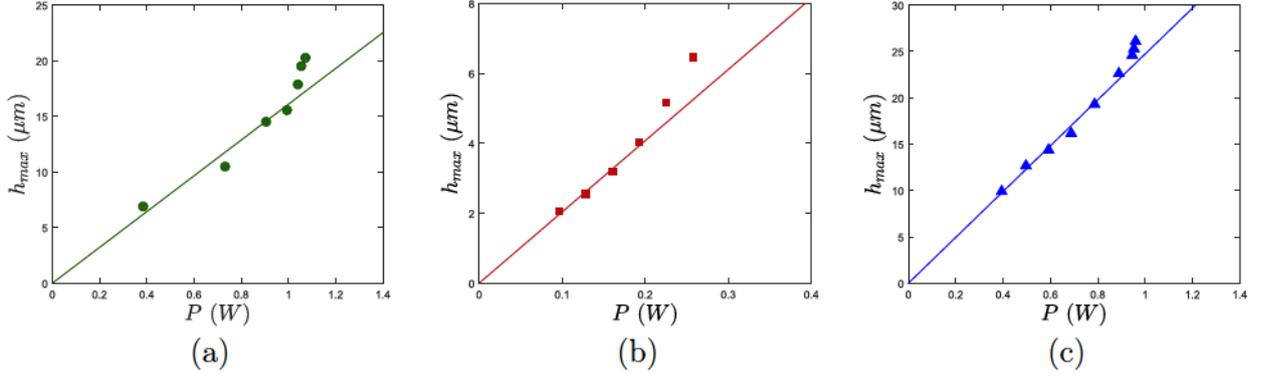


FIGURE 4.2 – Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance dans : (a) des microémulsions quasi-critiques à $T - T_C = 20K$ pour $\omega_0 = 4.47\mu m$, (b) des phases de Winsor à l'heptane pour $\omega_0 = 3.00\mu m$, (c) des phases de Winsor au toluène pour $\omega_0 = 7.47\mu m$.

Ce régime linéaire de déformation a déjà été bien caractérisé lors de précédentes études, aussi bien expérimentales que numériques, pour des microémulsions critiques de même nature loin de T_C ($\Delta T \sim 2 - 20K$) [50, 81, 92, 93, 94] mais également pour des phases transparentes de Winsor à l'heptane [70]. Nous confirmons ici cette observation pour des microémulsions quasi-critiques loin du point critique (ΔT varie jusqu'à 35K dans nos expériences) mais également pour des systèmes fluides présentant un fort contraste d'indices de réfraction tels que les phases de Winsor au toluène.

Afin de comprendre les comportements observés, considérons l'équation de l'interface soumise à la pression de radiation d'un faisceau laser gaussien, dans le cas où la pente locale de l'interface déformée est faible devant l'unité ($\frac{dh}{dr} \ll 1$ et $\theta_i \simeq 0$). D'après ce qui a été établi au chapitre 2, la hauteur de déformation $h(r)$ dans le régime linéaire obéit alors à l'équation différentielle suivante :

$$\frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) = \gamma\Delta_r h(r) - \Delta\rho gh(r) \quad (4.1)$$

Cette équation peut être intégrée analytiquement en effectuant une transformée de Fourier-Bessel, particulièrement adaptée au cas d'un faisceau laser gaussien de symétrie

4.1. DÉFORMATION D'INTERFACES LIQUIDES SOUS FAIBLE EXCITATION LASER

cylindrique. Le profil de déformation $h(r)$ de l'interface induit par pression de radiation optique est alors donné par [81] :

$$h(r) = \frac{2Pn_2}{c} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} J_0(kr) k dk \frac{\exp\left(-\frac{\omega_0^2 k^2}{8}\right)}{\Delta\rho g + \gamma k^2} \quad (4.2)$$

où J_0 est la fonction de Bessel d'ordre 0.

À partir de cette expression, il est possible de déterminer la hauteur maximale de déformation h_{max} atteinte par l'interface en $r = 0$, que nous avons mesurée, et qui est donnée par [81] :

$$h_{max} = h(0) = \frac{4Pn_2}{\pi c \omega_0^2} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \frac{1}{\Delta\rho g} \frac{\omega_0^2}{8l_c^2} \exp\left(\frac{\omega_0^2}{8l_c^2}\right) E_1\left(\frac{\omega_0^2}{8l_c^2}\right) \quad (4.3)$$

où l_c est la longueur capillaire et E_1 la fonction Exponentielle intégrale d'ordre 1 définie comme $\int_0^{+\infty} \frac{\exp(-\mu x)}{x+\beta} dx = \exp(\beta\mu) E_1(\beta\mu)$.

Nous voyons naturellement apparaître dans l'équation 4.3, le nombre de Bond optique introduit au chapitre 2 et défini par $Bo = \left(\frac{\omega_0}{l_c}\right)^2$. L'expression précédente de la hauteur maximale de déformation peut alors être réécrite sous la forme :

$$h_{max} = \frac{4Pn_2}{\pi c \omega_0^2} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \frac{1}{\Delta\rho g} \frac{Bo}{8} \exp\left(\frac{Bo}{8}\right) E_1\left(\frac{Bo}{8}\right) \quad (4.4)$$

Notons qu'en normalisant h_{max} par la taille du faisceau ω_0 , l'expression de la hauteur adimensionnée devient alors très simple :

$$\frac{h_{max}}{\omega_0} = \frac{\Pi_0}{8} \exp\left(\frac{Bo}{8}\right) E_1\left(\frac{Bo}{8}\right) \quad (4.5)$$

où $\Pi_0 = \frac{4Pn_2}{\pi c \omega_0 \gamma} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right)$ a été défini au chapitre 2 comme le rapport des effets optiques sur les effets capillaires.

D'après l'équation 4.4, nous démontrons de manière analytique la dépendance linéaire de la hauteur maximale de déformation avec la puissance laser. De plus, nous remarquons une dépendance de cette hauteur avec ω_0 , ce qui confirme l'observation faite quant à l'influence de la taille de l'excitation sur la déformation de l'interface. En traçant sur le même graphe la hauteur de déformation h_{max} en fonction de la puissance laser P pour différents *waists* ω_0 , nous remarquons une hiérarchie suivant la taille du faisceau comme nous le constatons sur l'exemple présenté en figure 4.3a. Pour une puissance donnée l'interface est d'autant plus déformée que la taille du faisceau diminue.

Dans la section suivante, nous allons voir comment exploiter ce régime linéaire, caractéristique des déformations d’interfaces liquides induites à faibles puissances, afin de déterminer la tension interfaciale de nos systèmes fluides.

4.1.2 Détermination sans contact de la tension interfaciale

Avec des méthodes de mesure par contact comme la lame de Wilhelmy ou l’anneau de Nouy par exemple, la tension de surface est définie comme la force qu’il faut fournir pour tirer la lame (ou l’anneau) vers le bas. Cela signifie que pour de très basses tensions, l’amplitude des forces capillaires devient alors très faible ce qui réduit la précision de la mesure jusqu’à la faire tendre vers zéro. Avec une méthode optique comme décrite ici, la déformation de l’interface est quant à elle d’autant plus importante que la tension interfaciale est faible, ce qui permet au contraire d’augmenter la précision de la mesure.

Dans la partie précédente, nous avons présenté le modèle analytique décrivant le profil ainsi que la hauteur maximale de déformation d’une interface liquide molle soumise à la pression de radiation optique dans le régime linéaire. Les expressions 4.2 et 4.3 font intervenir les différentes caractéristiques de nos systèmes fluides, notamment la tension interfaciale γ par l’intermédiaire de la longueur capillaire l_c ou du nombre de Bond optique Bo . Ainsi en détectant expérimentalement le profil stationnaire $h(r)$ de l’interface déformée, il devient alors possible d’en déduire la tension interfaciale γ par ajustement de ce dernier par l’équation 4.2. Cette méthode nécessite alors une détection précise de l’interface, ce qui n’est pas toujours simple à réaliser en particulier lorsque le contraste d’indices de réfraction Δn entre les deux phases devient faible, qui plus est pour de faibles déformations.

Nous avons donc plutôt choisi d’utiliser nos mesures des hauteurs maximales de déformation h_{max} en fonction de la puissance, effectuées avec différentes tailles de faisceau ω_0 pour chacun des systèmes fluides. Dans le cadre du régime linéaire de déformation, la courbe expérimentale $h_{max} = f(P)$ est une droite dont la pente est directement reliée à la tension interfaciale γ . En considérant l’équation 4.4, il est alors très simple d’en déduire l’expression analytique de la pente $\frac{dh_{max}}{dP}$. Dans cette approche sans contact, γ est un paramètre libre de $\frac{dh_{max}}{dP}$, tout autre paramètre étant connu, que nous faisons varier de telle manière à obtenir le meilleur accord possible avec la pente de nos courbes expérimentales. Avec cette démarche, la tension interfaciale obtenue peut varier légèrement d’un *waist* ω_0 à l’autre pour un même système fluide. Il convient alors de considérer une valeur moyenne de γ que nous déterminons à partir du nombre de Bond optique obtenu pour chaque valeur de ω_0 (et donc de γ). En traçant le nombre de Bond (déduit) en fonction du carré de la taille du faisceau ω_0^2 correspondant (voir figure 4.3b), nous obtenons alors une droite

4.1. DÉFORMATION D'INTERFACES LIQUIDES SOUS FAIBLE EXCITATION LASER

dont la pente permet d'accéder à la valeur moyenne de la tension interfaciale γ par :

$$\frac{dBo}{d\omega_0^2} = \frac{\Delta\rho g}{\gamma} \quad (4.6)$$

où $\Delta\rho$ est le contraste de masse volumique déterminé expérimentalement. À partir de la pente de la courbe présentée en exemple sur la figure 4.3b, nous trouvons ainsi $\gamma \simeq (3.4 \pm 0.5) \times 10^{-6}$ N/m.

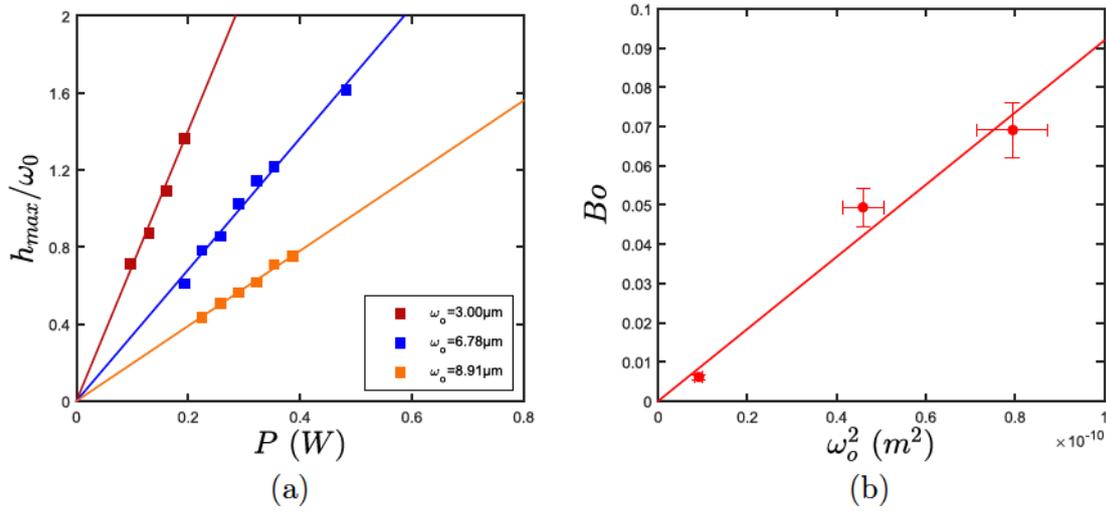


FIGURE 4.3 – (a) Évolution de la hauteur maximale de déformation normalisée par ω_0 en fonction de la puissance laser pour des phases de Winsor à l'heptane. (b) Évolution du nombre de Bond optique Bo correspondant en fonction du carré de la taille du faisceau.

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 3 lors de la caractérisation du faisceau, le *waist* ω_0 dépend de la puissance laser appliquée au boîtier. Ainsi pour chaque courbe expérimentale $h_{max} = f(P)$, la taille du faisceau varie légèrement et nous devons donc considérer la valeur moyenne de ω_0 sur la gamme de puissance correspondante afin de pouvoir l'injecter dans l'expression analytique de la pente $\frac{dh_{max}}{dP}$. Les puissances laser étant relativement faibles dans le régime linéaire de déformation, le *waist* ω_0 varie peu avec P (voir l'abaque présenté au chapitre 3) de sorte que cette dépendance n'a pas de réelle conséquence. En revanche, en traçant la pente $\frac{dh_{max}}{dP}$ en fonction de la taille du faisceau ω_0 (voir figure 4.4a), nous remarquons que celle-ci varie fortement aux petits *waists*. Ainsi les incertitudes que nous avons sur ω_0 ont peu d'effet pour de larges faisceaux mais elles deviennent importantes aux petits *waists*, ce qui peut induire des erreurs sur l'estimation de la tension interfaciale.

De même la variation de la pente pour les faibles tensions interfaciales est très rapide comme nous le constatons sur la figure 4.4b. L'utilisation du régime linéaire de déformation est donc très sensible pour les interfaces extrêmement molles (ce qui est le cas

des microémulsions quasi-critiques en se rapprochant du point critique). En revanche la méthode est peu sensible pour des tensions interfaciales plus faibles.

La dépendance particulière de la pente $\frac{dh_{max}}{dP}$ avec les différents paramètres physiques justifie donc la caractérisation expérimentale précise des systèmes fluides et du faisceau incident que nous avons réalisée (voir chapitre 3).

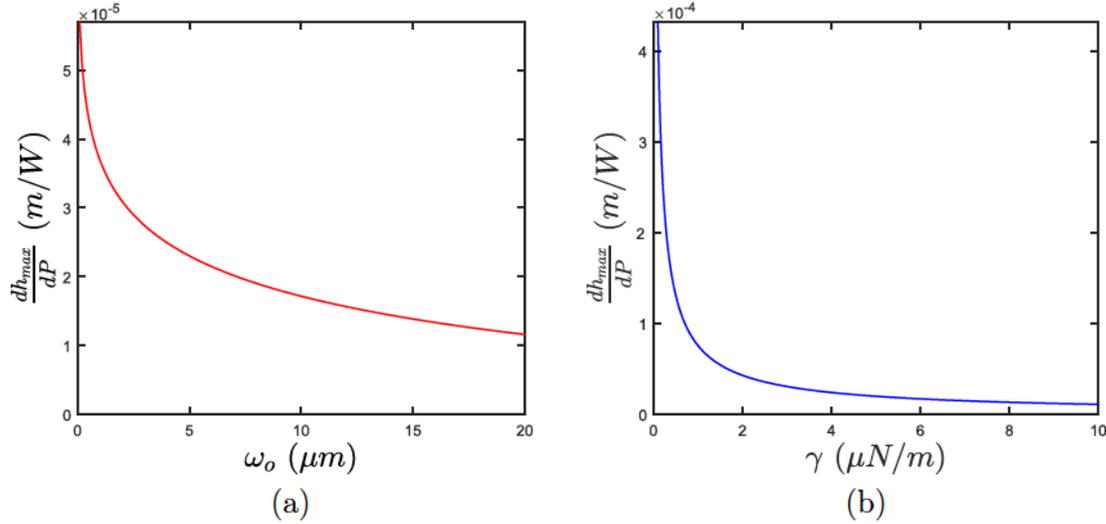


FIGURE 4.4 – Évolution de la pente analytique de la courbe $h_{max} = f(P)$ en fonction : (a) de la taille du faisceau ω_0 pour $\gamma = 3.43 \mu N/m$ et (b) de la tension interfaciale pour $\omega_0 = 3 \mu m$. Dans cet exemple, les propriétés du système fluide sont $\Delta\rho = 321 \text{ kg/m}^3$, $n_1 = 1.3325$ et $n_2 = 1.3875$ et correspondent aux phases de Winsor à l'heptane.

Les valeurs de tensions interfaciales déduites par l'étude du régime linéaire seront présentées dans la partie 4.3 et comparées aux valeurs obtenues avec les autres méthodes.

4.2 Instabilité de l'interface

4.2.1 Description du phénomène

Nous venons de présenter le régime linéaire de déformation d'interfaces liquides induites par laser existant aux faibles puissances. Pour des puissances plus importantes, l'évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} dévie de ce régime et devient non-linéaire (voir figure 4.2) jusqu'à atteindre un seuil en puissance au-delà duquel h_{max} augmente brutalement. Nous observons à ce seuil une instabilité de l'interface, qui passe alors d'une forme de bosse à une déformation de très grande amplitude et de très grand rapport d'aspect, comme nous pouvons le voir sur la figure 4.5.

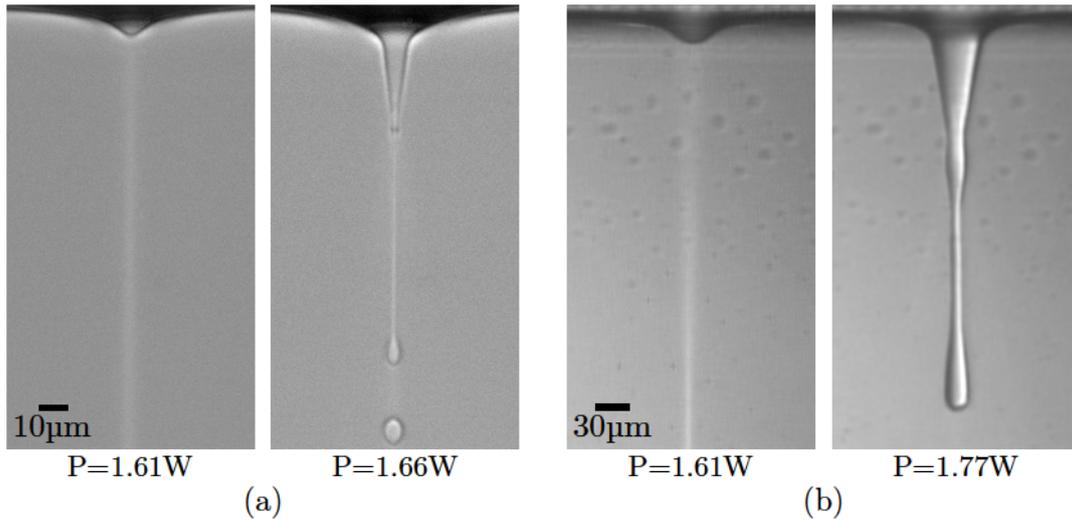


FIGURE 4.5 – *Déstabilisation d'une interface liquide soumise à la pression de radiation optique (a) dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 35K$ pour $\omega_0 = 5.51\mu m$ et (b) dans des phases de Winsor à l'heptane pour $\omega_0 = 13.26\mu m$.*

Dans le cas des microémulsions quasi-critiques, l'interface se déstabilise en un jet liquide de la phase supérieure dans la phase inférieure, centré sur l'axe du faisceau laser incident. Celui-ci est caractérisé par l'émission régulière de gouttelettes, signant la présence d'effets diffusifs dans les phases liquides qui créent des écoulements dans le sens de propagation de l'onde incidente [74]. Nous nous sommes ainsi aperçu que nos phases de Winsor au toluène n'étaient pas aussi transparentes que souhaitées mais diffusaient aussi la lumière incidente, ce à quoi nous nous attendions en constatant la turbidité (visible à l'œil nu) de notre échantillon. En revanche, pour des systèmes transparents comme nos phases de Winsor à l'heptane, la déformation produite au-delà du seuil d'instabilité n'émet pas de gouttes. Nous qualifions cette forme particulière d'aiguille liquide, selon la terminologie employée par J. Petit au cours de ses travaux sur les mêmes systèmes transparents [70].

L'instabilité des déformations d'interfaces liquides sous l'action d'un laser n'est pas un phénomène nouveau et avait déjà été mise en évidence expérimentalement avec des microémulsions quasi-critiques et des phases transparentes de Winsor à l'heptane lors des travaux respectifs de A. Casner [81] et de J. Petit [70]. Ce phénomène a également été observé numériquement par H. Chraïbi [94]. Dans cette étude, l'évolution de la hauteur maximale de déformation de l'interface liquide a été calculée numériquement pour un système critique à $\Delta T = 3.5K$, en l'absence de force diffusive. La figure 4.6, extraite de cette étude, représente la hauteur de déformation adimensionnée h_{max}/ω_0 en fonction du paramètre sans dimension Π_0 introduit au chapitre 2 et défini comme :

$$\Pi_0 = \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0\gamma} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \quad (4.7)$$

Nous voyons sur la figure 4.6 que la hauteur de déformation augmente linéairement avec le paramètre Π_0 avant de diverger rapidement au niveau du seuil d'instabilité (ici $\Pi_0^{seuil} = 3.9$ pour un faisceau se propageant du milieu le plus réfringent vers le moins réfringent).

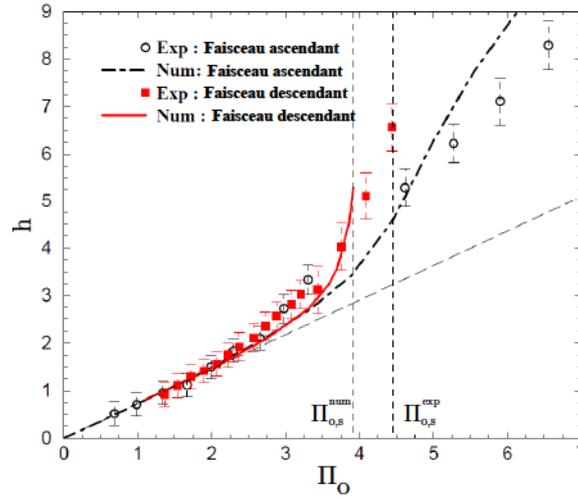


FIGURE 4.6 – Variation de la hauteur de l'interface en fonction de Π_0 pour les deux cas de propagation pour $\omega_0 = 5.3\mu\text{m}$ et $T - T_c = 3.5\text{K}$ ($Bo = 0.015$). $\Pi_{0,s}^{num}$ et $\Pi_{0,s}^{exp}$ sont les seuils d'instabilité numérique et expérimental pour une propagation du faisceau depuis le milieu le plus réfringent. Issue de [94].

Nous confirmons dans notre étude l'existence de cette instabilité pour des microémulsions quasi-critiques loin de T_C mais également pour des systèmes présentant un fort contraste d'indices de réfraction.

L'origine physique de cette instabilité a initialement été attribuée au phénomène de réflexion totale que peut subir le faisceau laser incident lorsque la déformation devient suffisamment importante (donc pour des incidences élevées). Dans ce schéma, la pression de radiation est alors très importante et toute la lumière incidente est réfléchi à l'intérieur de la déformation ce qui conduirait à une accumulation d'énergie induisant la déstabilisation de l'interface [93]. Wunenburger *et al.* ont montré par la suite que le phénomène de réflexion totale ne permettait pas à lui seul d'expliquer la déstabilisation de l'interface [50]. En effet, en mesurant l'angle d'incidence maximal θ_i^{max} du faisceau laser sur l'interface déformée au seuil d'instabilité dans des microémulsions quasi-critiques, ils ont montré que ce dernier était toujours inférieur à l'angle de réflexion totale θ_{RT} (voir figure 4.7a).

Lors de ses travaux de thèse, J. Petit a suivi une démarche identique et a montré qu'il en était de même pour des systèmes fluides transparents (Winsor à l'heptane) [70], comme nous pouvons le voir sur la figure 4.7b. Le mécanisme à l'origine de l'instabilité de l'interface est donc assez complexe et un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation induite semble être en jeu, comme le confortent les observations de cycles d'hystérésis en puissance de la hauteur de déformation [70].

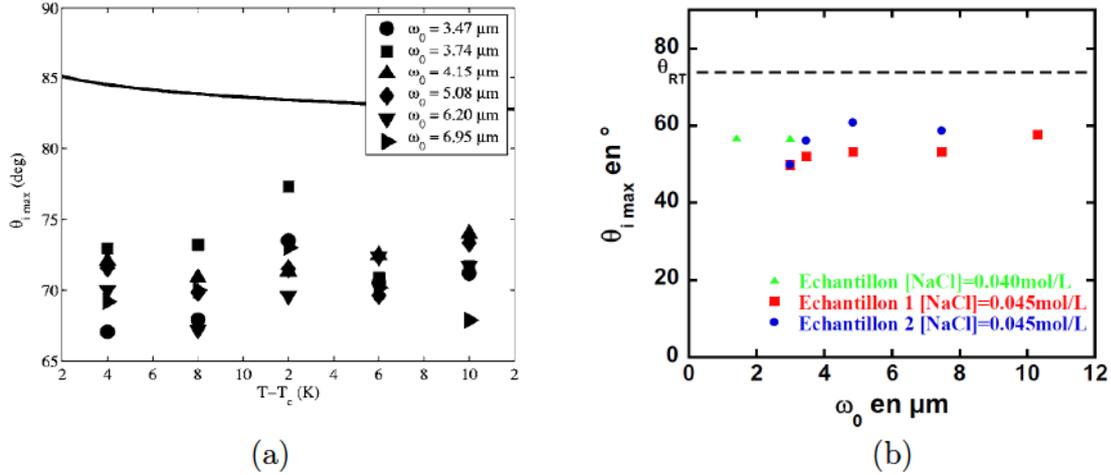


FIGURE 4.7 – (a) Variation de l'angle d'incidence maximal $\theta_{i,max}$ sur l'interface mesuré au seuil d'instabilité en fonction de $T - T_c$ dans des systèmes critiques. Le trait plein représente l'angle de réflexion totale θ_{RT} . Issue de [50]. (b) Variation de l'angle d'incidence maximal $\theta_{i,max}$ sur l'interface mesuré au seuil d'instabilité en fonction du waist ω_0 dans des phases de Winsor à l'heptane. Le trait pointillé représente l'angle de réflexion totale θ_{RT} . Issue de [70].

4.2.2 Caractérisation du seuil d'instabilité

Le seuil d'instabilité de l'interface a été caractérisé expérimentalement lors des précédentes études, pour des systèmes transparents [70] et des systèmes diffusants [81]. Il a été mis en évidence, dans les deux cas, une dépendance linéaire de la puissance seuil P_S avec la taille du faisceau incident ω_0 .

Nous observons également, pour tous nos systèmes fluides, la même dépendance du seuil d'instabilité avec ω_0 , comme nous le montrons sur la figure 4.8.

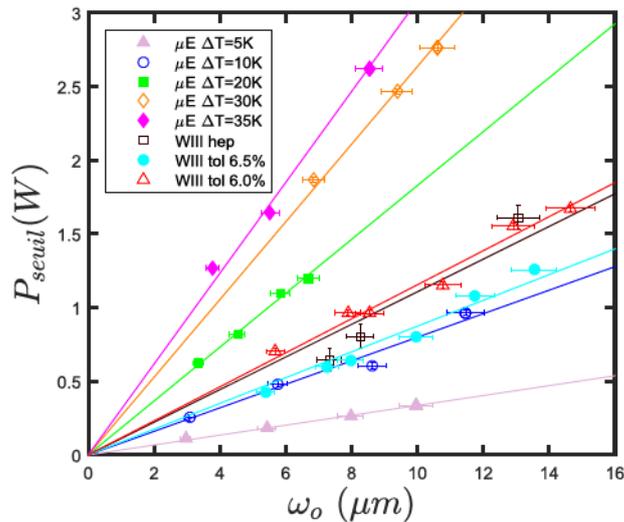


FIGURE 4.8 – Évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction du waist ω_0 .

Approche en *scaling*

Dans un premier temps, nous souhaitons simplement connaître la dépendance du seuil d'instabilité vis-à-vis des différents paramètres de l'expérience. Nous allons donc utiliser une approche en *scaling*, qui se base sur des simplifications de l'équation d'équilibre de l'interface et ne conduit bien évidemment pas à une expression rigoureuse de P_S .

Les déformations induites par pression de radiation avant la déstabilisation de l'interface étant de faibles amplitudes, nous considérons donc l'équation de l'interface précédemment établie pour le régime linéaire de déformation :

$$\frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) = \gamma\Delta_r h(r) - \Delta\rho gh(r) \quad (4.8)$$

Nous négligeons ici le terme $\Delta\rho gh(r)$ relatif aux effets de gravité dans l'équation de l'interface, ce qui se justifie empiriquement par le fait que le nombre de Bond est très petit devant l'unité dans nos expériences (typiquement $Bo \sim 0.01$).

De plus, pour de faibles déformations nous pouvons approximer la hauteur maximale de déformation (en $r = 0$) par $h \sim \omega_0$. Le terme de courbure $\Delta_r h(r) \sim h/\omega_0^2$ vaut alors $\Delta_r h(r) \sim 1/\omega_0$.

D'après ces résultats, l'équation de l'interface au seuil d'instabilité s'exprime alors (en $r = 0$) :

$$\frac{4P_S n_2}{\pi c\omega_0^2} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right) \sim \frac{\gamma}{\omega_0} \quad (4.9)$$

ce qui conduit alors à :

$$P_S \sim \frac{\pi c\gamma\omega_0}{4\Delta n} \left(\frac{n_1 + n_2}{n_2} \right) \quad (4.10)$$

Nous venons donc de montrer avec cette approche très simple que la puissance seuil à laquelle se déstabilise l'interface varie linéairement avec le *waist* ω_0 , ce qui est observé expérimentalement. De plus nous montrons que P_S est inversement proportionnelle au contraste d'indice optique Δn entre les deux phases. Ce résultat se comprend assez facilement d'après l'expression de la pression de radiation optique. En effet en augmentant la taille du faisceau ω_0 , ou en diminuant le contraste d'indice Δn , la pression de radiation optique devient plus faible. Il faut alors fournir plus de puissance afin de déstabiliser l'interface et par conséquent P_S augmente. La linéarité de la puissance au seuil avec la tension interfaciale se comprend de la même manière.

Approche analytique

Dans cette partie nous allons déterminer l'expression de P_S de façon plus rigoureuse, à partir d'un modèle développé par T. Guérin, théoricien au sein de notre laboratoire. Nous considérons donc cette fois l'équation de l'interface dans sa forme la plus générale :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{\gamma}{r} \frac{d}{dr} (r \sin \theta_i) - \Delta \rho g h(r) \quad (4.11)$$

où l'angle d'incidence θ_i est tel que $\sin \theta_i = h'(r) / \sqrt{1 + h'^2(r)}$ et la pression de radiation optique en incidence quelconque est définie, d'après le chapitre 2, par :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{2Pn_2\delta}{\pi c \omega_0^2} f(\theta_i, \theta_t) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (4.12)$$

avec

$$f(\theta_i, \theta_t) = \frac{\cos^2 \theta_i}{\delta} \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \quad (4.13)$$

où $R(\theta_i, \theta_t)$ et $T(\theta_i, \theta_t)$ sont les coefficients en intensité de réflexion et transmission de Fresnel et $\delta = \Delta n / n_2$. Lorsque $\theta_i > \theta_{RT} = \arcsin(n_1/n_2)$, un rayon incident est alors totalement réfléchi et donc $T = 0$.

Nous souhaitons tout d'abord simplifier l'expression du facteur géométrique $f(\theta_i, \theta_t)$ intervenant dans l'expression de la pression de radiation dans la limite de faible δ . Expérimentalement $\delta < 0.1$, donc ce paramètre peut être considéré petit.

Dans la limite $\delta \rightarrow 0$, l'expression de la fonction f se simplifie et devient alors :

$$f(\theta_i, \theta_t) = \begin{cases} \frac{4(\pi/2-\theta_i)^2}{((\pi/2-\theta_i)+\sqrt{-2\delta+(\pi/2-\theta_i)^2})^2} & (\theta_i < \theta_{RT} \ll 1) \\ 2\frac{(\pi/2-\theta_i)^2}{\delta} & (\theta_i > \theta_{RT}) \end{cases} \quad (4.14)$$

Cette fonction analytique est représentée sur la figure 4.9 en fonction de l'angle d'incidence θ_i .

Nous supposons ici que la puissance laser est suffisamment faible pour que l'angle d'incidence reste faible devant l'angle de réflexion totale ($\theta_i \ll \theta_{RT}$). Notons que cette hypothèse sur l'angle d'incidence semble vérifiée expérimentalement comme nous l'avons discuté précédemment (voir figure 4.7). Dans ces conditions l'expression de la fonction f présentée dans l'équation 4.14 peut alors être approximée à 1, comme nous le constatons également sur la figure 4.9.

Pour simplifier le problème, nous supposons encore une fois que le terme $\Delta \rho g h(r)$ relatif aux effets de gravité est négligeable dans l'équation 4.11.

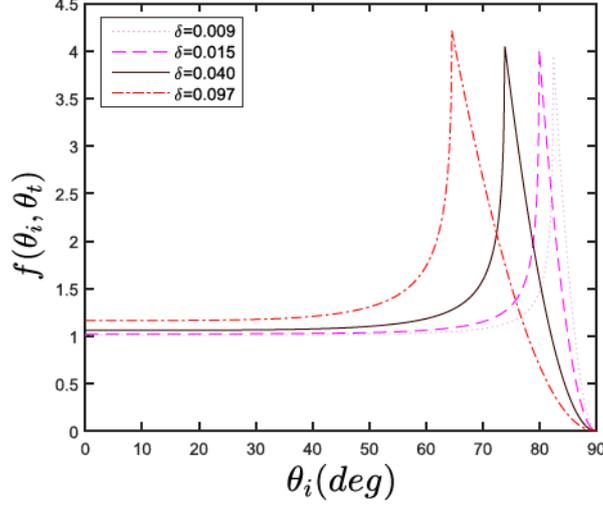


FIGURE 4.9 – Évolution du facteur géométrique $f(\theta_i, \theta_t)$ en fonction de l'angle d'incidence θ_i . Cette fonction est représentée pour différents rapports $\delta = \Delta n/n_2$ correspondant (dans l'ordre croissant) à des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5K$ et $35K$, des phases de Winsor à l'heptane et au toluène.

Dans ces conditions, l'équation de l'interface 4.11 devient :

$$\frac{2Pn_2\delta}{\pi c\omega_0^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) = \frac{\gamma}{r} \frac{d}{dr}(r \sin \theta_i) \quad (4.15)$$

En posant $\Pi^* = \frac{2Pn_2\delta}{\pi c\omega_0^2}$ et $u = r/\omega_0$, l'équation 4.15 devient :

$$\frac{\omega_0}{\gamma} \Pi^* u e^{-2u^2} = \frac{d}{du}(u \sin \theta_i) \quad (4.16)$$

Cette équation devient alors simple à intégrer, nous trouvons :

$$\sin \theta_i = \frac{\omega_0}{4\gamma} \Pi^* F(u) \quad (4.17)$$

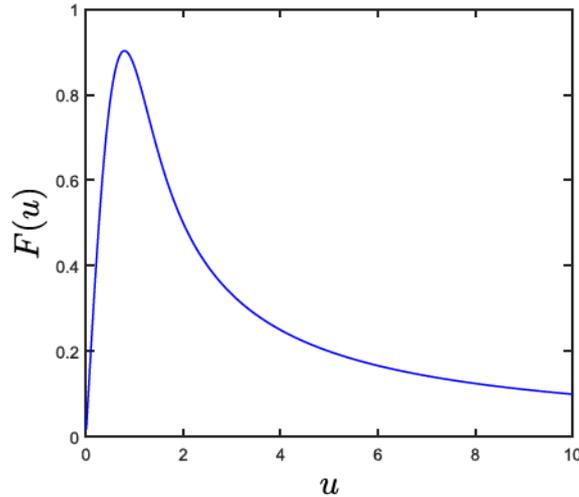
avec

$$F(u) = \frac{1 - e^{-2u^2}}{u} \quad (4.18)$$

La fonction analytique $F(u)$, représentée sur la figure 4.10, présente un maximum $F_m = 0.9025$.

D'après les expressions précédentes, nous pouvons en déduire l'expression de la puissance seuil d'instabilité pour laquelle $\sin \theta_i$ tend vers $\sin \theta_{RT} = \frac{n_1}{n_2} = 1 - \delta$. Dans la limite où $\delta \ll 1$, la condition $\theta_i \rightarrow \theta_{RT}$ équivaut à $\sin \theta_i \rightarrow 1$:

$$1 = \frac{\omega_0}{4\gamma} \Pi^* F_m \quad (4.19)$$


 FIGURE 4.10 – Représentation de la fonction analytique $F(u) = (1 - e^{-2u^2})/u$

d'où

$$P_S = \frac{2\pi c\gamma\omega_0}{\Delta n F_m} \quad (4.20)$$

En terme de pression de radiation adimensionnée, nous obtenons alors au seuil d'instabilité :

$$\Pi_S = \Pi^*(P_S) \frac{\omega_0}{\gamma} \quad (4.21)$$

soit en utilisant la définition de Π^* et l'équation 4.20 :

$$\Pi_S = \frac{4}{F_m} \simeq 4.43 \quad (4.22)$$

À partir de l'expression précédente de P_S donnée par l'équation 4.24 et celle du nombre sans dimension Π_0 , nous montrons donc que :

$$\Pi_0^{seuil} = \Pi_S \frac{2n_2}{(n_1 + n_2)} \quad \text{soit} \quad \Pi_0^{seuil} \simeq 8.86 \frac{n_2}{(n_1 + n_2)} \quad (4.23)$$

L'expression de la puissance au seuil d'instabilité peut donc s'écrire de façon très simple :

$$P_S = 4.43 \frac{\pi c\gamma\omega_0}{2\Delta n} \quad (4.24)$$

Nous venons donc de déterminer l'expression analytique de la puissance laser au seuil de déstabilisation. Nous remarquons alors que, malgré sa simplicité, l'approche en *scaling* présentée précédemment décrit très bien la physique de ce phénomène puisque nous retrouvons ici les mêmes dépendances de P_S avec les différents paramètres.

La nouveauté ici est qu'une application directe de cette instabilité permet de mesurer également de très faibles tensions interfaciales. En effet, d'après l'expression établie de la puissance seuil P_S (équation 4.24), celle-ci varie aussi linéairement avec γ . Ainsi en déterminant expérimentalement le seuil d'instabilité pour différentes tailles de faisceau ω_0 , il est alors possible d'en déduire la tension interfaciale à partir de la courbe expérimentale $P_S = f(\omega_0)$ dont la pente est donnée par :

$$\frac{dP_S}{d\omega_0} = \frac{2\pi c\gamma}{\Delta n F_m} \quad (4.25)$$

Cette méthode sans contact est donc simple et plus rapide à réaliser expérimentalement que la méthode de la déformation linéaire qui demande de nombreuses mesures en puissance pour un même *waist*. De plus elle ne nécessite pas de connaître le contraste de densité $\Delta\rho$ entre les deux phases, contrairement à la méthode utilisant le régime linéaire de déformation, pour laquelle poussée d'Archimède, pression de Laplace et pression de radiation sont par définition du même ordre de grandeur. Au seuil d'instabilité, les effets de pression de radiation deviennent largement dominants de sorte que l'expression précédemment établie de la puissance seuil conserve toute sa validité tant que les effets de la gravité demeurent petits devant la pression de Laplace (i.e pour de faibles Bo). Cela implique donc que l'utilisation du seuil d'instabilité comme moyen d'estimer γ devient moins fiable aux tensions interfaciales extrêmement faibles, pour lesquelles les effets de gravité deviennent comparables aux effets capillaires (Bo se rapproche de 1). Malgré l'extrême faiblesse des valeurs mises en jeu dans nos expériences ($\gamma \sim 10^{-6}$ N/m typiquement), le nombre de Bond reste néanmoins très petit devant l'unité de sorte que cette méthode reste toujours applicable.

L'innovation apportée par cette étude, par rapport aux précédentes, réside donc dans l'utilisation du seuil d'instabilité comme moyen simple et rapide de détermination de la tension interfaciale. Ceci a été permis d'une part par le développement d'un modèle analytique décrivant le seuil d'instabilité (lorsque les effets de la gravité sont négligeables) et d'autre part par la caractérisation expérimentale complète de nos systèmes fluides, notamment des indices de réfraction dans les systèmes quasi-critiques, ainsi que des tailles de faisceau ω_0 en fonction des paramètres de l'expérience.

Les valeurs de tensions interfaciales obtenues à partir de cette méthode seront exposées dans la partie suivante.

4.3 Comparaison des différentes méthodes

Différentes méthodes de tensiométrie existent notamment pour les systèmes de basse tension interfaciale comme la brisure d'une colonne liquide, la relaxation de ligament ou encore l'estimation par des lois théoriques. Nous avons présenté dans ce chapitre deux nouvelles méthodes optiques sans contact de détermination de très faible tension interfaciale se basant sur l'action de la pression de radiation optique sur une interface. Il subsiste alors la question de l'effet du faisceau laser sur les liquides lors de telles mesures (chauffage, effet Soret dans le cas des microémulsions, diffusion de la lumière...). Afin d'apporter une réponse à cette question, mais également d'évaluer la cohérence des différentes techniques optiques, nous allons confronter nos différentes mesures de tensions interfaciales γ entre elles et à celles déduites de l'étude de la brisure d'une colonne liquide présentée au chapitre 3.

4.3.1 Cas des systèmes quasi-critiques

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser aux différentes mesures de tension interfaciale effectuées dans des microémulsions quasi-critiques, pour lesquelles nous avons varié l'écart à la température critique $\Delta T = T - T_C$. La figure 4.11a est un bilan dans lequel les tensions interfaciales dans nos systèmes critiques, obtenues par différentes méthodes, sont tracées en fonction de l'écart à la température critique normalisé par T_C .

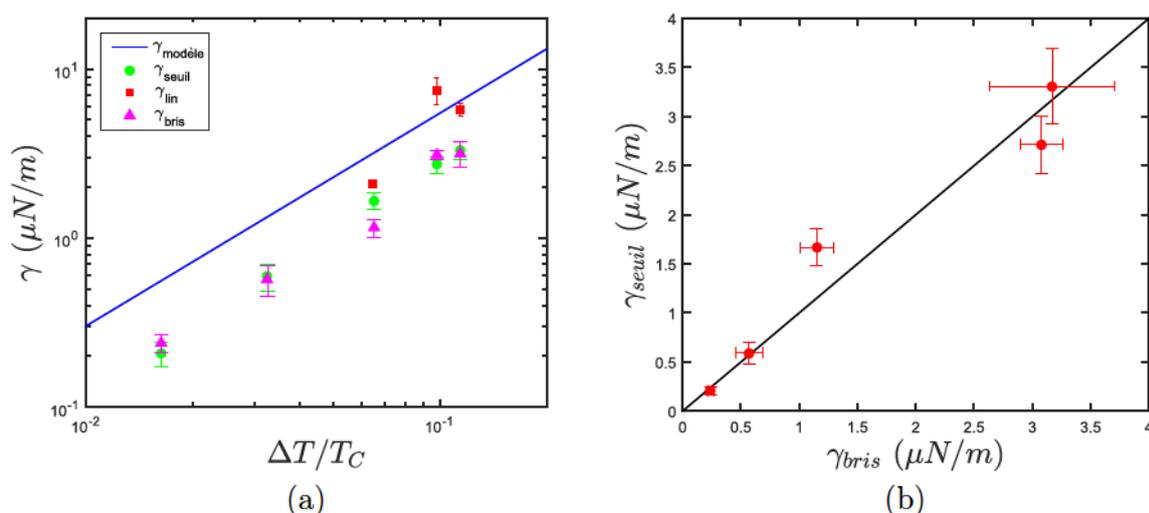


FIGURE 4.11 – (a) Évolution de la tension interfaciale dans des microémulsions quasi-critiques en fonction de l'écart à la température critique normalisée par T_C . La ligne grise en pointillés représente $\gamma = 5 \times 10^{-5}(\Delta T/T_C)^{1.26}$. (b) Comparaison des valeurs de tensions interfaciales obtenues par la méthode du seuil d'instabilité et de la brisure d'une colonne liquide. La ligne noire correspond à la droite $y = x$. Les points expérimentaux correspondent à $\Delta T = 5, 10, 20, 30$ et 35K .

Comme nous le constatons sur la figure 4.11a, nos différentes méthodes de mesures révèlent un comportement critique de la tension interfaciale γ , qui augmente avec l'écart à la température critique avec un exposant assez proche du modèle théorique présenté au chapitre 3. En ajustant ces différentes courbes par une expression de la tension de la forme $\gamma = \gamma_0 \left(\frac{T-T_c}{T_c} \right)^{2\nu}$ où l'exposant critique vaut $\nu = 0.63$, nous obtenons alors :

$$\gamma_0^{lin} \simeq 1.05 \times 10^{-4} \text{ N/m} \quad ; \quad \gamma_0^{seuil} \simeq 5.09 \times 10^{-5} \text{ N/m} \quad ; \quad \gamma_0^{bris} \simeq 5.01 \times 10^{-5} \text{ N/m}$$

Remarquons que ces amplitudes sont inférieures à celle du modèle théorique présenté au chapitre précédent dans lequel $\gamma_0 = 10^{-4} \text{ N/m}$, ce qui met en doute la valeur du rapport universel $R^+ = 0.39$ pour nos systèmes micellaires, comme discuté au chapitre 3.

Outre les incertitudes qui peuvent exister sur les divers paramètres expérimentaux (taille du faisceau ω_0 , indices optiques n_k , contraste de densité $\Delta\rho\dots$), l'écart sur les valeurs de γ obtenues par les différentes méthodes optiques (voir figure 4.11a) peut également s'expliquer par un éventuel effet du laser qui pourrait modifier la structure interne des fluides et donc la tension interfaciale par exemple. Étant données les valeurs de puissances laser mises en jeu au seuil d'instabilité de l'interface (P_S atteint quasiment $3W$ loin de T_C), il est aussi légitime d'envisager un effet thermique dû à la présence du faisceau laser. Cependant, l'absorption de ces systèmes étant très faible à la longueur d'onde utilisée ($\alpha_{abs}^{th} = 3.10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ pour les microémulsions et bien inférieure à cela pour les phases de Winsor), nous pouvons exclure les effets thermiques. De plus, en augmentant la taille du faisceau ω_0 , la puissance seuil augmente elle aussi de sorte qu'un effet du laser sur les fluides devrait être de plus en plus important à mesure que l'on augmente la puissance. Nous devrions alors observer un changement dans la courbe $P_S = f(\omega_0)$, ce qui n'est pas le cas (voir figure 4.8).

Il reste alors l'effet de la diffusion du faisceau laser causée par la turbidité des phases liquides. Comme nous l'avons déjà mentionné, la présence de diffusion dans les phases liquides entraînent l'établissement d'écoulements permanents dans le volume, orientés dans le sens de propagation du faisceau laser. Dans le cas d'un faisceau descendant, comme dans nos expériences, la pression de radiation optique et les effets diffusifs agissent dans le même sens et poussent l'interface. Nous devrions donc observer des déformations d'interfaces liquides plus importantes et des seuils d'instabilité plus bas en présence de diffusion de la lumière.

Dans le régime linéaire de déformation, les puissances laser sont relativement modérées, l'effet de la force diffusive est donc assez limité. En revanche, l'instabilité de l'interface apparait pour des puissances plus élevées ce qui engendre des effets diffusifs plus importants. Ainsi la tension interfaciale déduite du seuil d'instabilité est a priori plus faible que

la tension réelle, ce qui pourrait donc expliquer l'écart sur les valeurs de tensions obtenues entre les deux méthodes optiques. Cependant les effets diffusifs ne semblent pas être à l'origine du désaccord observé. En effet, en variant l'écart à la température critique de $\Delta T = 5\text{K}$ à 35K , nous modulons la turbidité des phases micellaires (et donc l'amplitude de la force diffusive). En s'éloignant du point critique, la turbidité diminue et les effets diffusifs deviennent donc moins importants. Nous devrions donc observer une convergence des deux méthodes optiques pour les grands écarts à la température critique, ce qui n'est pas le cas (voir figure 4.11a).

Cet argument est de plus renforcé par le fait que les tensions déduites de la brisure d'une colonne liquide, pour laquelle il n'y a aucun faisceau laser, sont en très bon accord avec les valeurs déduites du seuil d'instabilité, comme nous le montrons sur la figure 4.11b.

4.3.2 Généralisation à tous les systèmes fluides utilisés

Nous nous sommes intéressés dans la partie précédente à la détermination de la tension interfaciale par pression de radiation optique en considérant uniquement les microémulsions quasi-critiques, pour lesquelles le contraste d'indices optiques Δn est faible. Nous allons donc maintenant effectuer la comparaison des différentes méthodes de détermination de la tension interfaciale en considérant cette fois les phases de Winsor également. Ajoutons que les méthodes sans contact de détermination de la tension interfaciale décrites dans ce chapitre se basent sur l'équation de l'équilibre mécanique d'une interface liquide soumise à une contrainte d'origine optique, dans laquelle les effets diffusifs ne sont pas pris en compte. Il faut alors rester prudent quant à l'utilisation des méthodes optiques comme moyen de déterminer la tension interfaciale pour des systèmes diffusants. Ces méthodes semblent en revanche parfaitement adaptées pour des systèmes fluides transparents comme nos phases de Winsor à l'heptane.

Dans un premier temps, nous avons souhaité comparer les valeurs de γ obtenues par nos deux méthodes optiques sans contact. Pour ce faire, nous avons représenté sur la figure 4.12a la tension interfaciale γ_{lin} déduite du régime linéaire en fonction de la tension γ_{seuil} déduite du seuil d'instabilité de l'interface. Cette représentation graphique nous permet alors d'inclure les résultats obtenus pour les phases de Winsor (à l'heptane et au toluène) et ainsi d'observer tous les systèmes fluides utilisés sur le même graphe, indépendamment de l'écart à la température critique des systèmes micellaires.

Nous observons sur la figure 4.12a que nos deux méthodes optiques ne conduisent pas tout à fait aux mêmes valeurs de tension interfaciale. Le comportement est assez confus et aucune tendance claire ne semble se dégager.

La dispersion obtenue entre les deux méthodes provient alors très probablement du régime

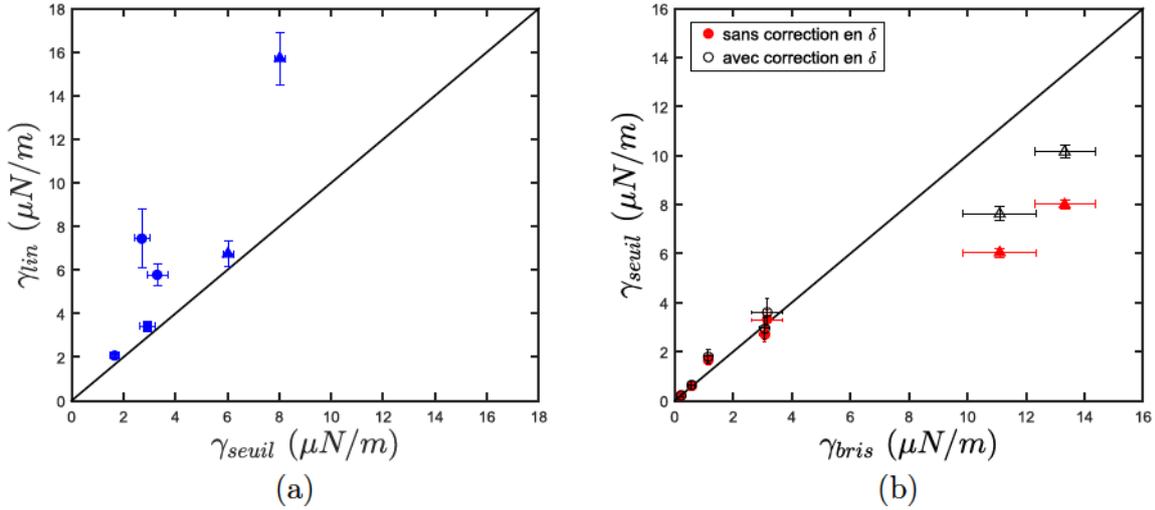


FIGURE 4.12 – Comparaison des valeurs de tensions interfaciales obtenues par la méthode : (a) du régime linéaire de déformation et du seuil d’instabilité, (b) du seuil d’instabilité et de la brisure d’une colonne liquide. La ligne noire sur chaque graphe correspond à la droite $y = x$. Les symboles ronds correspondent aux microémulsions quasi-critiques, les symboles carrés aux phases de Winsor à l’heptane et les triangles aux phases de Winsor au toluène.

linéaire de déformation, celui-ci étant très sensible aux différents paramètres expérimentaux (comme ω_0 par exemple) comme nous l’avons mentionné précédemment. De plus, la présence d’un ménisque mouillant la paroi de la cellule contenant l’échantillon diphasique peut éventuellement conduire à un effet de lentille, qui ne permettrait donc pas de mesurer la hauteur réelle de la déformation. Notons que la hauteur de ce ménisque est d’autant plus petite que la tension interfaciale est faible, l’effet (s’il existe) est donc assez limité pour nos échantillons.

Ajoutons que le seuil en puissance résulte d’une instabilité de l’interface pour laquelle des effets non-linéaires interviennent. Nous savons également que le couplage propagation-déformation accentue l’intensité au centre et donc diminue la puissance seuil par rapport à ce que l’on pourrait attendre avec l’expression angulaire de la pression de radiation optique utilisée. Ce couplage peut alors conduire à une sous-estimation de la tension déduite du seuil d’instabilité, notamment au fort contraste d’indices de réfraction Δn .

Afin de vérifier cette dernière hypothèse, nous pouvons donc confronter les valeurs de tension interfaciale déduites du seuil d’instabilité à celles déduites de la brisure d’une colonne liquide. Nous avons vu dans la partie précédente que ces deux méthodes conduisent à des valeurs très proches dans le cas des microémulsions quasi-critiques. Ce résultat valide alors l’utilisation du seuil d’instabilité pour la mesure de faibles tensions interfaciales dans le cas de faibles contrastes d’indices optiques Δn . Comme nous le constatons sur la figure 4.12b, ce comportement n’est pas vérifié pour nos phases de Winsor au toluène

pour lesquelles $\gamma_{seuil} < \gamma_{brisure}$. Ce résultat semble alors confirmer l'influence du couplage propagation-déformation sur la détermination de la tension interfaciale lorsque Δn devient important.

Nous pouvons alors montrer théoriquement, qu'un terme correctif en $\delta = \Delta n/n_2$ est à apporter à l'expression analytique 4.24 établie pour la puissance laser au seuil d'instabilité qui s'exprime alors :

$$P_S = (4.43 - 3\sqrt{\delta}) \frac{\pi c \gamma \omega_0}{2\Delta n} \quad (4.26)$$

Cette correction n'est donc pas totalement négligeable pour les forts contrastes d'indices optiques si nous souhaitons déterminer la tension interfaciale à partir du seuil d'instabilité. Nous remarquons alors sur la figure 4.12b que le terme correctif en δ permet d'obtenir des valeurs plus proches de celles déduites de la brisure sans pour autant expliquer complètement l'écart observé entre ces deux méthodes sans contact.

La correction exacte à apporter à l'expression analytique de P_S afin de prendre en compte cet effet de δ est encore en cours d'étude actuellement.

4.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés aux morphologies d'interfaces liquides soumises à la pression de radiation optique d'une onde laser incidente selon la puissance appliquée.

Nous avons alors montré qu'il existe différents comportements suivant la puissance laser appliquée. Ainsi pour de faibles puissances laser, l'interface adopte une forme de bosse dont la hauteur maximale augmente linéairement avec l'excitation optique appliquée. En revanche, pour des puissances laser plus importantes, la hauteur de déformation de l'interface devient alors non-linéaire et atteint un seuil en puissance au niveau duquel l'interface se déstabilise vers une déformation de grande amplitude.

Nous avons alors montré comment exploiter ces deux régimes particuliers comme outil sans contact pour la détermination de très basses tensions interfaciales. En confrontant ces méthodes optiques à l'étude de la brisure d'une colonne liquide, qui est une technique éprouvée et n'utilisant pas de sollicitation extérieure, nous avons alors montré que celles-ci sont relativement bien adaptées à la détermination de très faibles tensions. En effet, l'utilisation d'un faisceau laser ne semble pas perturber la mesure puisqu'il n'induit pas d'élévation de température dans l'échantillon par absorption et que les effets diffusifs sont assez limités pour les deux régimes de déformations considérés ici. Nous avons ainsi montré que l'utilisation du seuil d'instabilité pour la mesure de très basses tensions interfaciales, proposée dans cette étude, constitue une méthode simple et efficace dans la limite des faibles contrastes d'indices optiques. En revanche, le couplage entre la propagation de l'onde laser et la déformation de l'interface liquide peut devenir problématique lorsque le

contraste optique de l'échantillon diphasique devient important.

Ajoutons que les méthodes optiques proposées dans cette étude nécessitent également une caractérisation plus complète des échantillons (n_1 , n_2 , $\Delta\rho\dots$), mais également de l'excitation, que des méthodes sans contact "classiques".

Nous avons présenté dans ce chapitre une étude statique des déformations d'interfaces par pression de radiation optique afin de déterminer la tension interfaciale. Une perspective de cette étude est d'étudier également la dynamique de ces déformations, cela nous permettrait alors de déterminer d'autres propriétés des interfaces comme la viscosité.

Nous terminons ce chapitre par les observations de déformations singulières d'interfaces liquides induites sous forte excitation laser. En effet, nous avons montré que la déstabilisation de l'interface conduit à la formation d'un jet ou d'une aiguille liquide de très grande amplitude. Nous observons que ces structures liquides particulières prennent naissance dans un cône liquide issu de l'interface (voir figure 4.13a), qui persiste quels que soient les paramètres expérimentaux ou le système fluide choisi (dès lors que $P > P_S$). Dans certaines conditions particulières, la déformation de l'interface se limite même à un cône liquide, et qui reste stable est robuste dans le temps comme nous le verrons au chapitre suivant. Nous qualifions alors ces déformations singulières d'interfaces de "cônes optiques".

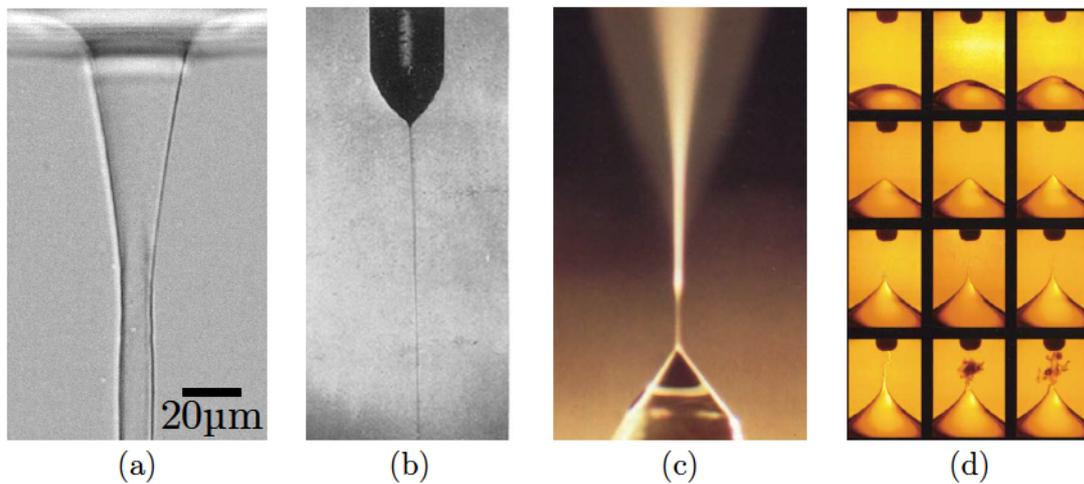


FIGURE 4.13 – (a) *Cône optique formé dans des phases de Winsor à l'heptane pour $P = 1.61 W$ et $\omega_0 = 9.09\mu m$.* (b) *Cône de Taylor formé sous champ électrique intense sur une goutte de glycérine. Issue de [24].* (c) *Déformation conique d'une goutte de méthanol placée à l'extrémité d'une électrode avec émission d'un spray. Issue de [36].* (d) *Dynamique de déformation d'une interface eau-huile. L'électrode, visible en haut des images, mesure 6.4mm de diamètre. Issue de [95].*

Ces structures induites optiquement ne sont pas sans rappeler les comportements observés en électro-hydrodynamique, où une goutte de liquide (conducteur ou diélec-

trique) adopte une forme conique sous l'action d'un champ électrique intense (voir figure 4.13b-c-d). Bien après sa découverte au début du siècle dernier par Zeleny [24], ce phénomène désormais connu sous le nom de "cône de Taylor" a fait l'objet de nombreuses études expérimentales [35, 96, 97], théoriques [29, 98, 99, 100, 101] mais aussi numériques [102, 103]. Au-delà de l'aspect fondamental que représente cette manifestation électrohydrodynamique, les cônes de Taylor possèdent de nombreuses applications puisqu'un jet se brisant généralement en gouttelettes monodisperses peut même être produit à la pointe de celui-ci en augmentant l'intensité du champ électrique (voir figure 4.13c), ce qui se nomme *electrospraying* : injection de carburant [104], spectrométrie de masse de biomolécules [105], impression à jet d'encre [106] ou encore microfluidique [107].

La déformation et la déstabilisation d'interfaces liquides en une structure cône-jet ne sont donc pas des phénomènes propres au régime optique mais s'inscrivent dans le cadre plus général de la déformation d'interfaces liquides sous champ. L'observation des cônes optiques sous forte excitation laser suggère ainsi une forte analogie entre électro- et opto-hydrodynamique. Cette analogie sera discutée au chapitre suivant, dans lequel nous présenterons la caractérisation complète de ces cônes optiques.

Chapitre 5

Cônes optiques

Ce chapitre est dédié à la description et la caractérisation détaillées des cônes optiques, qui ont été introduits brièvement au chapitre précédent. Ces déformations singulières apparaissent sous forte excitation laser, lorsqu'un faisceau continu incident, focalisé à l'interface liquide, se propage de la phase la plus réfringente vers la moins réfringente (de haut en bas dans notre cas). Ces cônes optiques font alors inévitablement penser aux cônes de Taylor observés en électro-hydrodynamique.

Dans une première partie, nous reviendrons donc sur la physique des cônes de Taylor induits électriquement afin d'identifier les caractéristiques qui leurs sont propres. Nous caractériserons ensuite expérimentalement les cônes optiques, et plus particulièrement l'angle de ces derniers, vis-à-vis des divers paramètres expérimentaux. Puis nous décrirons le modèle analytique qui a été développé afin de rendre compte des comportements observés et nous le confronterons à l'expérience. Dans une quatrième partie, nous enrichirons cette analyse par les résultats de notre étude numérique des déformations coniques d'interfaces liquides. Nous comparerons également de façon quantitative les tendances numériques obtenues aux observations expérimentales.

Nous concluons enfin ce chapitre par un résumé des résultats marquants et des perspectives avant de terminer par une discussion sur le caractère universel des déformations coniques, qui sont observées dans de nombreux problèmes d'interfaces fluides.

5.1 Physique des cônes de Taylor

Avant de s'intéresser plus en détail aux cônes optiques induits par laser, revenons tout d'abord sur la physique des cônes de Taylor observés en électro-hydrodynamique et qui ont été mis en évidence expérimentalement pour la première fois par Zeleny au début du siècle dernier [24]. Lors de ses travaux, Zeleny montra qu'une interface séparant un liquide conducteur d'un milieu isolant (historiquement la surface libre d'une goutte d'alcool ou de glycérine) peut se déformer lorsque celle-ci est soumise à un champ électrique intense.

Au-dessus d'une certaine valeur critique du champ électrique, l'interface devient instable et adopte alors la forme d'un cône qui est généralement stationnaire (voir figure 5.1). Ce phénomène de déformation d'interface liquide vers une forme conique se produit par exemple sur les gouttelettes d'eau des nuages lors d'un orage [108] ou lorsque la foudre s'abat sur un lac. Sous l'action de champs électriques encore plus intenses, la pointe de ce cône se déstabilise à son tour pour former un jet émettant des gouttelettes chargées, phénomène connu sous le terme d'*electrospraying* comme nous le voyons sur la figure 5.1. Afin d'expliquer cette instabilité, Zeleny supposa que la goutte se déforme en un sphéroïde allongé sous l'action du champ électrique, ce qui lui permit de calculer l'intensité de ce champ aux pôles et donc d'en déduire la contrainte normale à la surface de la goutte. Lorsque la longueur de cette goutte sphéroïdale augmente, la contrainte électrique normale à celle-ci augmente également ce qui induit une plus grande déformation et ainsi de suite jusqu'à déstabiliser la goutte. Ce raisonnement a conduit Zeleny à établir une expression du critère d'instabilité en termes de potentiel électrique appliqué à la goutte.

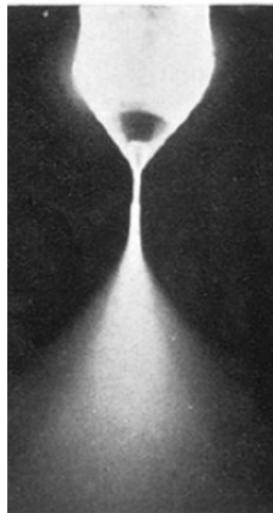


FIGURE 5.1 – *Cône de Taylor formé sous champ électrique intense sur une goutte d'alcool. La formation d'un spray est clairement visible au bout du jet. Issue de [24].*

En l'absence de toute analyse détaillée du phénomène, Taylor s'intéressa de façon théorique au problème des interfaces électrisées et décrivit la structure de ce qui est désormais connu sous le nom de "cône de Taylor" [27]. Il montra tout d'abord que l'utilisation de l'analyse sphéroïdale d'une goutte déformée sous champ électrique, utilisée par Zeleny, était incorrecte et que son hypothèse quant à l'égalité des pressions interne et externe à la goutte ne permettait pas d'observer l'existence d'une instabilité. Afin d'expliquer la formation des jets induits électriquement, Taylor a donc envisagé une approche différente dans laquelle il cherchait à déterminer la condition pour laquelle un cône liquide existe à l'équilibre. Nous revenons ci-dessous sur les grandes étapes du calcul de Taylor. En régime stationnaire, la forme conique de l'interface soumise à un champ électrique ré-

sulte de l'équilibre entre les contraintes capillaires (pression de Laplace) et les contraintes électrostatiques à la surface du liquide :

$$\gamma\kappa = \frac{1}{2}\varepsilon|\vec{E}|^2 \quad (5.1)$$

où γ est la tension de surface entre le liquide conducteur et l'isolant, κ la courbure du cône de Taylor, ε la permittivité diélectrique de l'isolant et \vec{E} le champ électrique appliqué.

La courbure locale de l'interface conique peut s'exprimer par $\kappa = \vec{\nabla} \cdot \vec{n}$ où \vec{n} est un vecteur normal à l'interface et orienté vers l'extérieur de la déformation. La géométrie historiquement étudiée étant celle d'une goutte, il est alors plus simple de considérer le problème en coordonnées sphériques pour lesquelles la normale à l'interface conique est alors $\vec{n} = \vec{u}_\theta$. En utilisant l'expression de la divergence en coordonnées sphériques, l'équation 5.1 devient :

$$\frac{1}{r \tan\theta} \gamma = \frac{1}{2}\varepsilon|\vec{E}|^2 \quad (5.2)$$

où θ est l'angle entre l'axe du cône (choisi selon la direction z) et sa surface. La pointe de la déformation conique est choisie comme origine du repère.

Puisque la courbure du cône varie comme l'inverse de la distance r , il apparaît que la contrainte électrique varie de même et par conséquent le champ électrique \vec{E} doit décroître en $r^{-1/2}$. En l'absence de charges volumiques dans le milieu isolant, le champ électrique $\vec{E} = -\vec{\nabla}V$ respectant cette divergence possède alors un potentiel électrostatique V :

$$V = V_0 + Ar^{1/2}P_{1/2}(\cos\theta) \quad (5.3)$$

où V_0 est le potentiel électrique en $r = 0$, A une constante et $P_{1/2}(\cos\theta)$ la fonction polynomiale de Legendre d'ordre 1/2.

Le fluide étant considéré comme un conducteur parfait, la surface du cône de Taylor est alors une équipotentielle pour laquelle $V = V_0$. En définissant $\theta = \theta_0$ comme la surface de ce cône, nous déduisons :

$$P_{1/2}(\cos\theta_0) = 0 \quad (5.4)$$

La fonction de Legendre d'ordre fractionnel 1/2 s'annule une seule fois pour $0 < \theta < \pi$ en $\theta_0 = 130.7^\circ$ [109]. Puisque que la fonction $P_{1/2}(\cos\theta)$ est finie et positive pour $0 < \theta < \theta_0$ mais infinie à $\theta = \pi$, le milieu conducteur doit donc occuper l'espace $0 < \theta < \theta_0$. Le seul champ électrique possible qui puisse exister avec une interface à l'équilibre se trouve donc à l'extérieur d'un cône de demi-angle :

$$\theta_T = 180 - \theta_0 = 49.3^\circ \quad (5.5)$$

5.1. PHYSIQUE DES CÔNES DE TAYLOR

Ceci constitue le résultat principal du raisonnement de Taylor. À l'aide d'un dispositif développé spécifiquement, Taylor reproduisit l'expérience de Zeleny et montra que des déformations coniques peuvent être produites sur des interfaces eau-huile ou sur des films de savon. Il vérifia ainsi expérimentalement que le demi-angle des déformations coniques observées était très proche de la valeur $\theta_T = 49.3^\circ$ attendue pour un conducteur parfait, comme nous pouvons le voir sur la figure 5.2a-b issues de l'article historique de Taylor paru en 1964 [27].

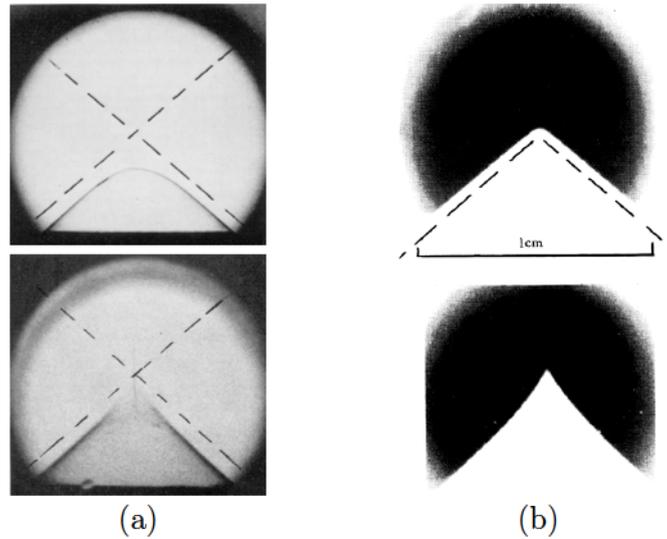


FIGURE 5.2 – Photographies des cônes de Taylor induits sous champ électrique sur (a) un film de savon et (b) une interface eau-huile (négatifs). L'image supérieure (resp. inférieure) est prise avant (resp. après) formation du jet. Les lignes pointillées forment un angle de $2\theta_T = 98.6^\circ$. Issues de [27].

L'analyse théorique de Taylor a ensuite été étendue au cas d'une interface séparant deux liquides diélectriques par Ramos et Castellanos en 1994 [103]. En considérant la même dépendance du champ électrique en $r^{-1/2}$, la continuité du potentiel V et de la contrainte électrique $\frac{1}{2}\varepsilon|\vec{E}|^2$ à l'interface en équilibre imposent :

$$\begin{aligned} V_1 &= A_1 r^{1/2} P_{1/2}(\cos \theta) \\ V_2 &= A_2 r^{1/2} P_{1/2}(-\cos \theta) \end{aligned} \quad (5.6)$$

où V_1 et V_2 représentent respectivement les potentiels électriques à l'extérieur et à l'intérieur de la déformation de l'interface liquide et A_1 et A_2 sont des constantes.

Les conditions de continuité à l'interface conique, définie par $\theta = \theta_0$, conduisent à :

$$\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} = -\frac{P'_{1/2}(-\cos \theta_0)P_{1/2}(\cos \theta_0)}{P'_{1/2}(\cos \theta_0)P_{1/2}(-\cos \theta_0)} \quad (5.7)$$

Nous constatons donc d'après l'équation 5.7 que l'angle du cône liquide $\theta_c = \pi - \theta_0$ varie avec le rapport des constantes diélectriques. Ramos et Castellanos ont ainsi montré qu'un cône liquide en équilibre avec un champ électrique ne pouvait exister que pour un angle $\theta_c > 30^\circ$ ce qui correspond à $\varepsilon_1/\varepsilon_2 < 0.056$. Le rapport des constantes diélectriques décroît ensuite avec θ_c jusqu'à s'annuler pour la solution classique $\theta_T = 49.3^\circ$. La condition $\varepsilon_2 \rightarrow \infty$ est en effet une façon courante de définir un milieu conducteur en électrostatique. Nous présentons sur la figure 5.3a, extraite de [103], la dépendance du demi-angle du cône θ_c avec le rapport des constantes diélectriques où la partie colorée correspond à la région où les cônes stables existent.

Ajoutons que le même résultat concernant la dépendance de l'angle du cône avec les propriétés diélectriques des liquides fut trouvée par Li *et al.* la même année [110] via des considérations énergétiques sur une goutte mince de volume fini (*slender-body theory*). En 1998, Stone *et al.* ont établi une dépendance légèrement différente de l'angle du cône avec les constantes diélectriques à l'aide d'une approche similaire, en très bon accord avec les études précédentes [101].

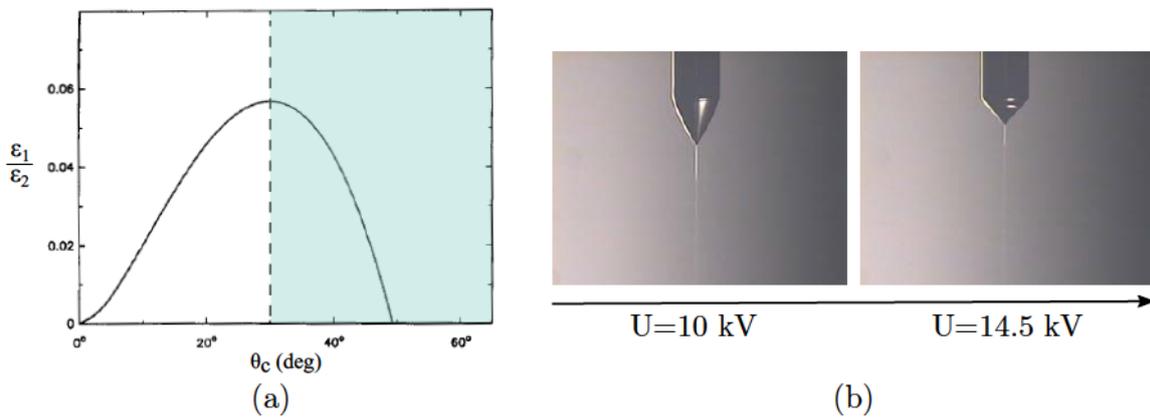


FIGURE 5.3 – (a) Évolution du demi-angle du cône avec le rapport des constantes diélectriques. Les indices 1 et 2 représentent respectivement le milieu externe et interne à la déformation conique. La partie colorée correspond à la région où les cônes stables existent. Issue de [103]. (b) Déformation conique d'une goutte d'éthanol sous champ électrique en fonction de la tension U appliquée. Issue de [111].

Même s'il existe un certain nombre de travaux mettant en évidence la dépendance de θ_c avec les propriétés diélectriques des fluides, la dépendance du demi-angle de ce cône avec l'amplitude de la tension appliquée n'a jamais été clairement démontrée ou quantifiée à notre connaissance. La seule preuve de la dépendance du demi-angle du cône liquide avec l'amplitude de l'excitation que nous avons trouvée est une image expérimentale montrant la déformation d'une goutte d'éthanol par champ électrique [111]. Cette observation, présentée en figure 5.3b tend donc à montrer que θ_c est d'autant plus grand que l'amplitude de l'excitation est importante.

5.1. PHYSIQUE DES CÔNES DE TAYLOR

Récemment, Elele *et al.* ont réalisé une étude expérimentale de la dynamique de déformation d'interfaces liquides sous champ électrique [97], dans laquelle ils ont développé un montage qui permet d'induire un cône liquide tout en évitant la formation d'un jet et l'émission de gouttelettes qui l'accompagnent généralement. Dans cette étude, ils démontrent qu'il est possible d'induire des déformations d'interfaces coniques pour une large gamme de systèmes fluides, en variant ainsi les constantes diélectriques ϵ , les conductivités σ , la masse volumique ρ ou encore la tension de surface γ . En mesurant l'angle du cône liquide θ_c au cours de sa dynamique de formation pour différents paramètres, ils montrent que θ_c est insensible à l'intensité du champ électrique et qu'il varie légèrement suivant les propriétés du fluide (comme la tension de surface ou les propriétés diélectriques), comme nous pouvons le voir sur les deux graphes du haut de la figure 5.4 [97] où chaque couleur correspond à un système fluide différent. De plus, ces expériences ayant été également réalisées en micro-gravité (à bord de l'*ISS*), nous remarquons en comparant les deux graphes du bas de la figure 5.4 qu'il existe une faible influence de la gravité sur l'angle du cône. En effet, nous remarquons que les angles des déformations sous gravité terrestre (à gauche) sont légèrement supérieurs à ceux des déformations en micro-gravité (à droite).

En régime stationnaire (la hauteur h de la déformation atteint sa valeur maximale h_m), les angles limites moyens sont respectivement $\theta_c = 46.8^\circ$ en micro-gravité (où $Bo < 10^{-4}$) et $\theta_c = 48.3^\circ$ sur Terre (où $Bo \sim 0.04 - 0.08$) ce qui est proche de la valeur théorique $\theta_T = 49.3^\circ$. Le nombre de Bond est défini ici comme $Bo = \rho g R_g^2 / \gamma$ où R_g est le rayon de la goutte de liquide.

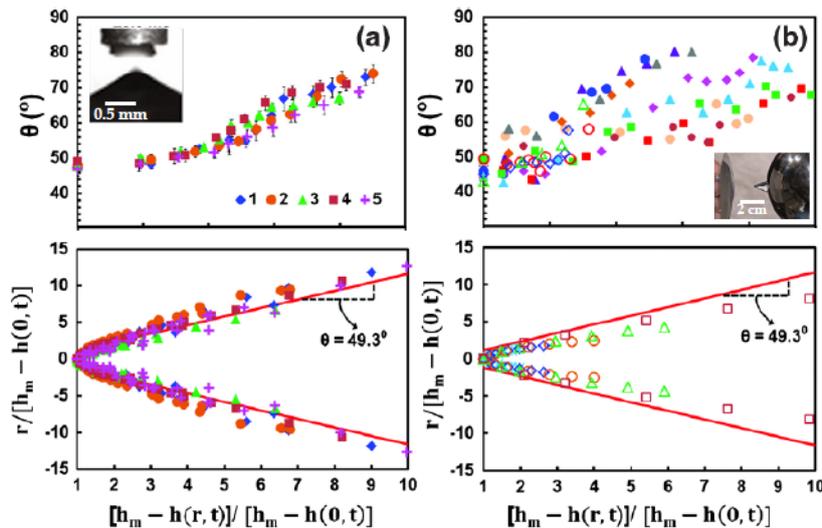


FIGURE 5.4 – Évolution du demi-angle du cône en fonction de la hauteur de déformation $h_m - h$ et représentation de la forme du ménisque en fonction de la distance instantanée entre la pointe du cône et son maximum $h_m - h$. (a) Expériences réalisées sous gravité terrestre. (b) Expériences réalisées en micro-gravité. Issue de [97].

5.2 Des cônes de Taylor aux cônes optiques

Après avoir décrit la physique des cônes de Taylor induits électriquement, nous allons maintenant caractériser expérimentalement l'angle des cônes optiques et identifier les similitudes de comportements qui peuvent exister entre les cônes électro-hydrodynamiques et les cônes optiques.

5.2.1 Mise en évidence des cônes optiques

Rappelons que ces déformations particulières, induites par pression de radiation, résultent d'une instabilité à seuil qui se manifeste sous forte excitation laser lorsqu'un faisceau continu incident est focalisé à l'interface liquide et se propage de la phase la plus réfringente vers la moins réfringente. Nous observons alors une morphologie de l'interface très différente de la simple "bosse" observée dans le régime linéaire, comme nous le constatons au vu des déformations présentées en figure 5.5a. En effectuant une détection du profil de l'interface sur ces photographies expérimentales avec le logiciel ImageJ, nous remarquons alors que la pente de l'interface, i.e. le demi-angle θ de la déformation locale, tracée en fonction de la hauteur z , présente clairement un plateau qui n'existe pas dans le régime linéaire de déformation (voir figure 5.5b). Ce plateau témoigne ainsi de l'émergence d'une déformation conique de l'interface dont l'angle est constant et donné par la valeur de ce plateau (environ 15° ici).

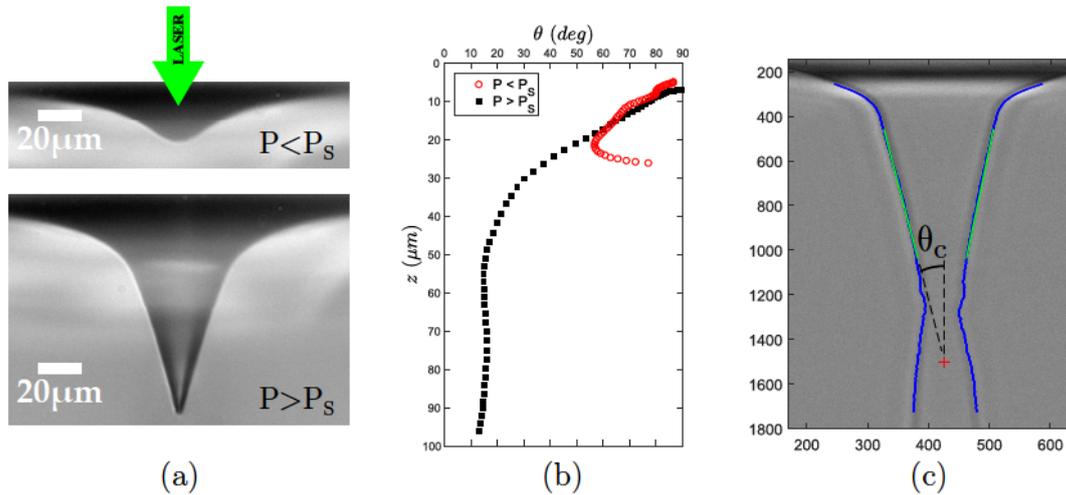


FIGURE 5.5 – (a) Déformations d'une interface liquide induites par pression de radiation dans des phases de Winsor au toluène ($S = 6.0\%$ wt). La puissance est respectivement $P = 1.51\text{ W}$ (haut) et $P = 1.55\text{ W}$ (bas), la taille du faisceau est $\omega_0 = 12.88\mu\text{m}$. (b) Angle local θ de la déformation en fonction de la hauteur z pour les deux images présentées en (a). (c) Profil détecté d'une interface déformée par pression de radiation dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10\text{ K}$. La puissance est $P = 0.98\text{ W}$ et le waist $\omega_0 = 11.49\mu\text{m}$. Les lignes vertes correspondent à l'ajustement linéaire du profil et la croix rouge représente l'intersection de ces lignes

Afin de réaliser une caractérisation expérimentale précise, l'angle du cône liquide est déterminé de façon plus rigoureuse à l'aide d'un programme d'analyse d'images, développé sous MATLAB® dans notre équipe, qui balaie l'image ligne par ligne verticalement et détecte le contour de l'interface déformée (correspondant au gradient maximal d'intensité). En effectuant un ajustement linéaire du profil détecté dans la région du plateau (correspondant au cône optique), nous en déduisons alors le demi-angle θ_c du cône en régime stationnaire, après avoir moyenné sur plusieurs images. Un exemple de détection du profil d'une interface réalisée avec ce programme pour des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10$ K est présenté en figure 5.5c.

Comme pour les interfaces électrifiées, cette déformation conique est très stable et robuste et nous l'observons de manière commune à tous nos systèmes fluides (microémulsions quasi-critiques et phases de Winsor), comme nous pouvons le voir sur la figure 5.6. Nous remarquons ici tout de suite que l'angle du cône est spécifique à chaque système fluide, ce qui laisse alors penser que la morphologie conique dépend fortement des caractéristiques des fluides utilisés, ce qui est également le cas en électro-hydrodynamique comme nous l'avons mentionné précédemment. Comme nous l'avons montré au chapitre précédent, cette structure conique émerge généralement de l'interface accompagnée d'un jet (ou une aiguille) liquide, stabilisé par la pression de radiation optique [112], de manière similaire aux structures cône-jet observées sous champ électrique.

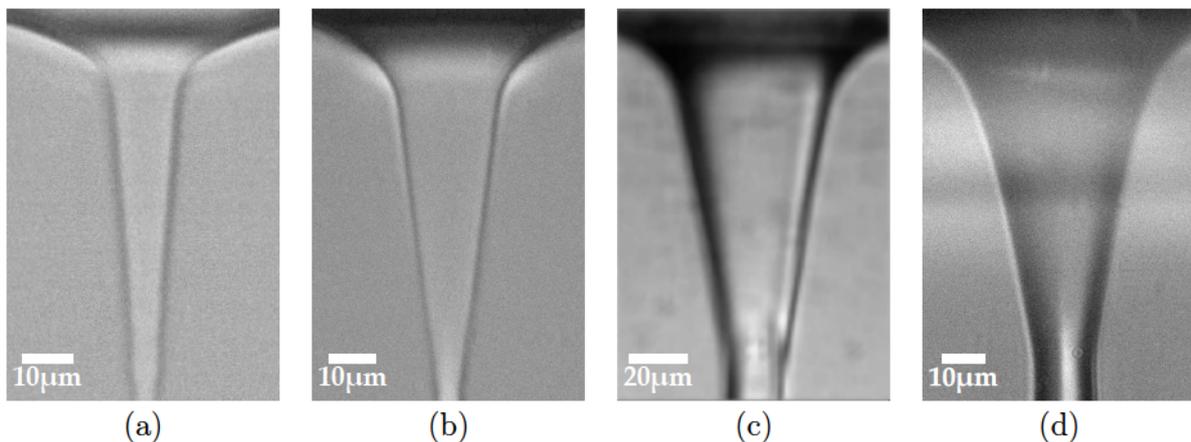


FIGURE 5.6 – *Déformations coniques d'interfaces induites par pression de radiation optique dans : (a) des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10$ K ($P = 0.62$ W, $\omega_0 = 8.67 \mu\text{m}$) et (b) à $\Delta T = 35$ K ($P = 2.89$ W, $\omega_0 = 8.99 \mu\text{m}$), (c) des phases de Winsor à l'heptane ($P = 2.25$ W, $\omega_0 = 12.21 \mu\text{m}$) et (d) des phases de Winsor au toluène ($P = 2.90$ W, $\omega_0 = 9.01 \mu\text{m}$).*

5.2.2 Caractérisation expérimentale du demi-angle des cônes optiques

Le demi-angle θ_c du cône, tracé en fonction de la puissance P pour différentes tailles de faisceau ω_0 , dans tous nos systèmes fluides, est présenté en figure 5.7. Nos mesures confirment alors la dépendance de θ_c vis-à-vis des caractéristiques des fluides eux-mêmes comme le contraste d'indice de réfraction Δn , le contraste de masse volumique $\Delta\rho$ ou encore la tension interfaciale γ , ces trois paramètres physiques variant sur plusieurs ordres de grandeur par l'utilisation de nos différents systèmes fluides. En effet, comme nous pouvons le constater sur la figure 5.7, le demi-angle du cône vaut $\theta_c \simeq 3^\circ$ pour des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5\text{K}$ alors que celui-ci vaut $\theta_c \simeq 15^\circ$ pour des phases de Winsor au toluène.

Notons qu'il est difficile de conclure quant au comportement de θ_c en fonction d'une caractéristique particulière de nos échantillons, indépendamment des autres caractéristiques. En effet en variant l'écart à la température critique ΔT dans nos phases micellaires de microémulsions, les différents paramètres physiques sont modifiés de façon simultanée, avec des exposants différents. De plus, les phases de Winsor utilisées ici sont telles que lorsque le contraste d'indices optiques augmente, la tension interfaciale augmente également.

Les graphes de la figure 5.7 sont classés par tension interfaciale γ et contraste d'indices optiques Δn croissants, partant des microémulsions proches de la température critique T_C pour arriver aux phases de Winsor à l'heptane puis au toluène. En considérant un *waist* ω_0 donné, donc une couleur de symboles donnée sur cette figure, nous remarquons que le demi-angle du cône θ_c varie d'un système à l'autre.

Ce comportement de la morphologie des cônes optiques avec les paramètres des fluides semble donc être analogue à celui observé en électro-hydrodynamique où l'angle varie en fonction des propriétés diélectriques des fluides utilisés par exemple.

En plus de dépendre des caractéristiques des fluides, le demi-angle dépend également des paramètres du faisceau incident. En effet, quel que soit le système fluide utilisé, nous remarquons que le demi-angle du cône θ_c diminue légèrement avec la puissance laser incidente (voir figure 5.7). Cette décroissance reste néanmoins assez faible et elle est masquée à ce stade par la dépendance de ω_0 avec la puissance laser.

De plus, en considérant un système fluide donné (dont les caractéristiques sont fixés), nous remarquons une hiérarchie suivant la taille du faisceau ω_0 , comme nous pouvions l'observer dans le régime linéaire de déformation présenté au chapitre 4. En effet, pour une puissance donnée (spécifique à chaque système fluide), le demi-angle du cône augmente avec la taille du faisceau ω_0 , comme illustré sur la figure 5.8. Sur cette figure, nous avons choisi, pour chaque système fluide, une valeur de puissance laser commune aux différentes

5.2. DES CÔNES DE TAYLOR AUX CÔNES OPTIQUES

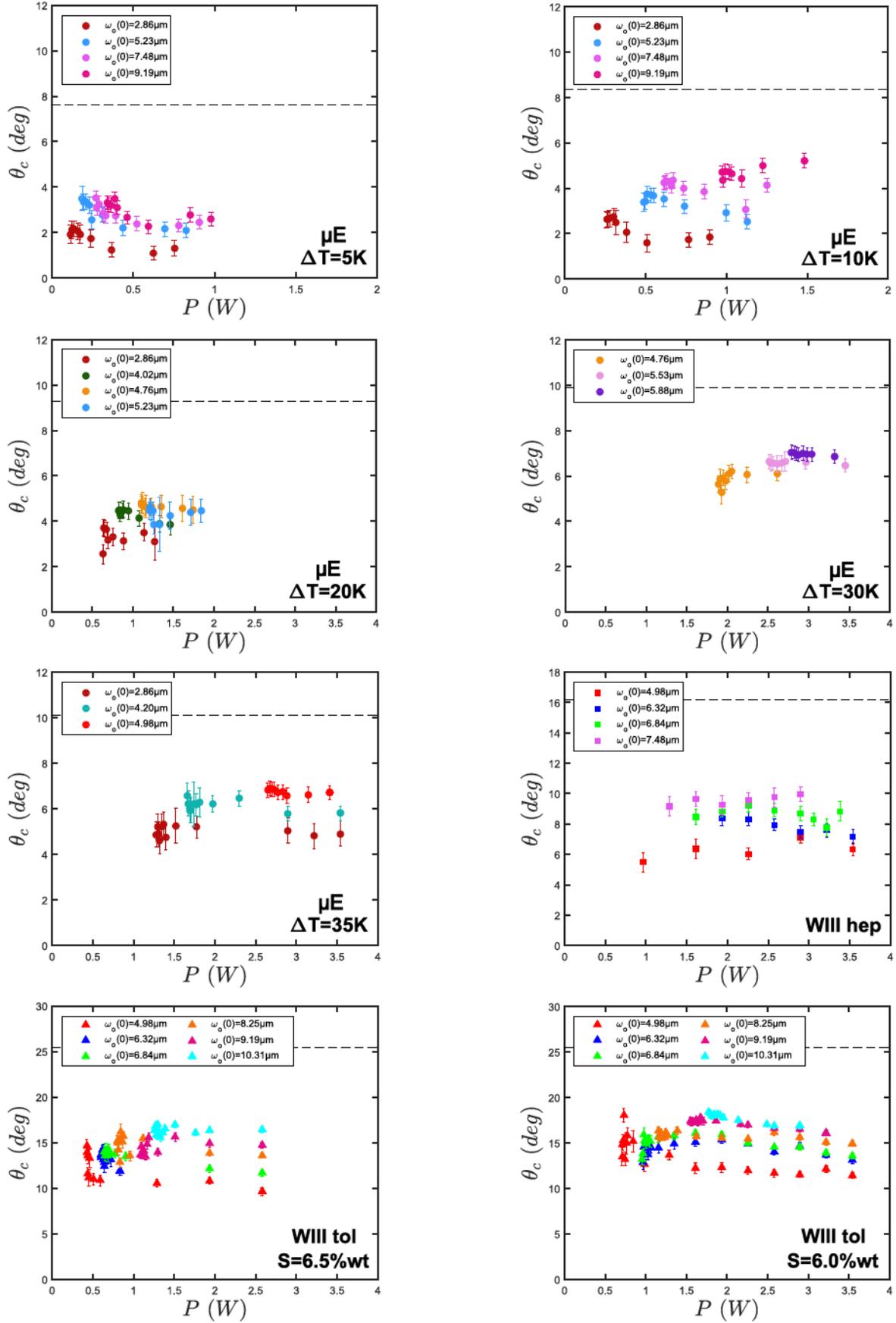


FIGURE 5.7 – Évolution du demi-angle θ_c du cône en fonction de la puissance laser incidente pour différents waists ω_0 . La ligne pointillée représente l'angle limite $(90^\circ - \theta_{RT})$.

tailles de faisceau en se référant à la figure 5.7. Le comportement obtenu semble donc suggérer que le demi-angle du cône évolue non linéairement avec ω_0 mais avec un exposant α proche de $1/2$.

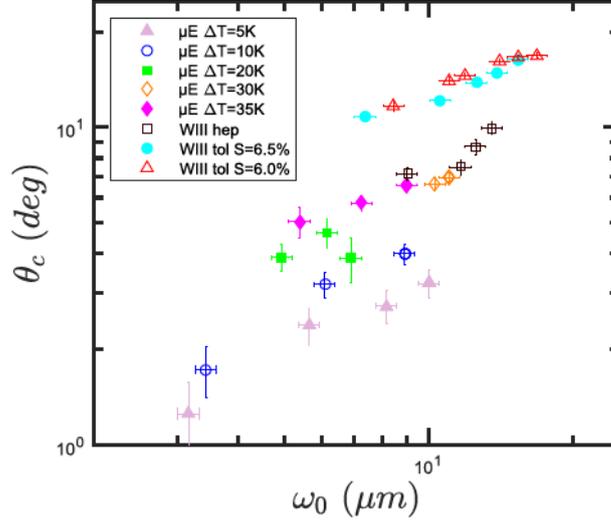


FIGURE 5.8 – Évolution du demi-angle du cône avec la taille du faisceau incident ω_0 . Pour chaque système fluide, la puissance laser est fixée à une valeur commune.

5.2.3 Origine physique des cônes optiques

Les différents graphes de la figure 5.7 nous renseignent également sur le mécanisme physique à l'origine des cônes optiques. Nous remarquons en effet que le demi-angle θ_c de la déformation conique stationnaire est toujours inférieur à $(90^\circ - \theta_{RT})$, représenté par la ligne pointillée sur chaque graphe de la figure 5.7, où $\theta_{RT} = \arcsin(n_1/n_2)$ est l'angle de réflexion totale. Le demi-angle du cône et l'angle d'incidence étant complémentaires ($\theta_c + \theta_i = 90^\circ$), la condition de réflexion totale $\theta_i > \theta_{RT}$ est alors toujours vérifiée au sein d'un cône optique stationnaire, qui se comporte ainsi comme un guide d'onde liquide pour le faisceau incident.

Pour confirmer cet aspect, nous pouvons d'ailleurs observer expérimentalement la propagation du faisceau laser en remplaçant le filtre coloré, habituellement placé devant la caméra pour éliminer la diffusion du faisceau par le milieu, par un filtre moins atténuant qui permet d'observer cette diffusion de la lumière. La dynamique de formation d'un cône optique est présentée en figure 5.9, et traduit parfaitement le couplage qui existe entre propagation et déformation. Nous remarquons qu'aux premiers instants de cette dynamique, le faisceau est tout d'abord focalisé par l'interface déformée, qui agit comme une lentille liquide, avant de subir une réflexion totale qui se fait de plus en plus loin à mesure que l'interface se déforme. Une fois le régime stationnaire atteint, nous voyons que le

faisceau incident est totalement réfléchi dans le cône liquide et qu'il est en partie réfléchi et réfracté dans le jet émis à la pointe du cône.

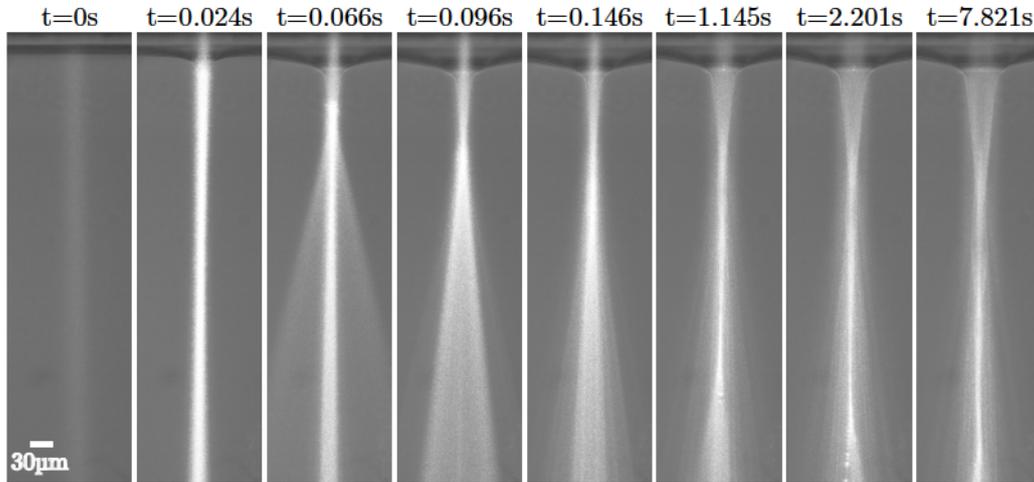


FIGURE 5.9 – *Dynamique de formation d'un cône optique dans des microémulsions critiques à $\Delta T = 20K$. La puissance laser est $P = 4.33 W$ et le waist $\omega_0 = 10.67 \mu m$.*

L'émergence de déformations coniques d'interfaces liquides induites par laser résultent donc manifestement de la nature particulière de la pression de radiation optique qui apparait à la réflexion totale.

De plus, lors des expériences de déformations d'interfaces par pression de radiation réalisées sur les mêmes systèmes fluides dans les études précédentes, ces structures coniques n'ont jamais été observées lorsque le faisceau laser se propage de la phase la moins réfringente vers la phase la plus réfringente, où seul le phénomène de réfraction peut exister. Cela semble donc confirmer le rôle tenu par la réflexion totale dans la formation des cônes optiques.

Dans cette partie, nous avons caractérisé expérimentalement le demi-angle du cône optique pour nos différents systèmes fluides et montré les similitudes avec les cônes de Taylor. Nous avons en effet montré que dans le régime optique le demi-angle θ_c dépend de l'excitation incidente, que ce soit via la puissance laser ou la taille du faisceau ω_0 , mais également des caractéristiques des fluides eux-mêmes, comme cela peut être le cas avec les propriétés diélectriques des fluides pour les cônes de Taylor.

Dans la prochaine partie, nous allons aborder de façon analytique le problème d'une interface liquide soumise à la pression de radiation d'une onde laser de forte puissance ($P > P_S$). Le but est alors de détailler un modèle afin d'expliquer la formation de ces cônes optiques.

5.3 Étude analytique des cônes optiques

5.3.1 Considérations théoriques

Dans le chapitre précédent, nous avons décrit théoriquement les déformations d'interfaces liquides induites par pression de radiation optique sous excitation laser modérée, ce qui nous a permis de caractériser analytiquement la puissance P_S au seuil d'instabilité. Nous allons maintenant proposer une approche simple, basée sur l'équation d'équilibre de l'interface, afin de décrire de manière analytique les déformations coniques observées sous forte excitation laser ($P > P_S$).

Le modèle analytique décrivant de façon plus rigoureuse les déformations d'interfaces liquides pour $P > P_S$, développé par T. Guérin, est présenté en annexe D et conduit au même résultat que l'approche présentée dans cette partie.

En négligeant les effets de gravité, l'équilibre mécanique de l'interface liquide soumise à la pression de radiation optique est donnée par :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{\gamma}{r} \frac{d}{dr} (r \sin \theta_i) \quad (5.8)$$

où θ_i est l'angle d'incidence et Π_{rad} est la pression de radiation optique en incidence quelconque définie par (voir chapitre 2) :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{2Pn_2\delta}{\pi c\omega_0^2} f(\theta_i, \theta_t) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (5.9)$$

avec

$$f(\theta_i, \theta_t) = \frac{\cos^2 \theta_i}{\delta} \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \quad (5.10)$$

où $R(\theta_i, \theta_t)$ et $T(\theta_i, \theta_t)$ sont les coefficients en intensité de réflexion et transmission de Fresnel et $\delta = \Delta n/n_2$.

Comme nous l'avons remarqué lors de notre caractérisation expérimentale, la condition de réflexion totale du faisceau incident $\theta_i > \theta_{RT} = \arcsin(n_1/n_2)$ est toujours vérifiée dans un cône optique. Ainsi, les coefficients de réflexion et de transmission de Fresnel valent $R = 1$ et $T = 0$ pour $\theta_i > \theta_{RT}$. Dans ces conditions, la fonction f se simplifie et l'expression de la pression de radiation optique devient alors :

$$\Pi_{rad}^{RT}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \cos^2 \theta_i \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (5.11)$$

De plus, l'angle d'incidence θ_i est tel que $\sin \theta_i = h'(r)/\sqrt{1+h'^2(r)}$. Celui-ci étant le complémentaire de l'angle de la déformation locale $\theta(r)$ ($\theta_i + \theta(r) = \pi/2$), les pressions de radiation et de Laplace s'expriment alors par :

$$\begin{aligned}\Pi_{rad}^{RT} &= \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \sin^2 \theta(r) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \\ \Pi_{Laplace} &= \frac{\gamma}{r} \frac{d}{dr}(r \cos \theta(r))\end{aligned}\quad (5.12)$$

Dans la limite des petits angles de déformation locale dans la région conique ($\cos \theta(r) \simeq 1$ et $\sin \theta(r) \simeq \theta(r)$), l'équation d'équilibre de l'interface 5.8 devient alors (en utilisant 5.12) :

$$\frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \theta^2(r) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) = \frac{\gamma}{r} \quad (5.13)$$

Le profil radial de l'angle local de déformation $\theta^{th}(r)$ est alors donné par :

$$\theta^{th}(r) = \sqrt{\frac{\pi c\omega_0\gamma}{4Pn_2}} H\left(\frac{r}{\omega_0}\right) \quad (5.14)$$

avec

$$H(u) = e^{u^2}/\sqrt{u} \quad (5.15)$$

La fonction analytique H , qui décrit la forme du profil radial $\theta^{th}(r)$ d'un cône optique, est représentée sur la figure 5.10. Nous voyons que cette fonction présente très clairement un plateau pour $r/\omega_0 \simeq 0.3 - 0.7$, ce qui est caractéristique de l'émergence d'une déformation conique de l'interface. Pour $r/\omega_0 > 0.7$, la fonction H (et donc l'angle local θ^{th}) augmente avec r/ω_0 , traduisant le retour de l'interface vers un état non déformée loin de l'axe du faisceau $r = 0$. Nous observons également une augmentation de l'angle $\theta^{th}(r)$ pour $r/\omega_0 < 0.3$ lorsque ce rapport diminue, ce qui traduit ici le fait que la déformation de l'interface décrite par ce modèle est fermée à son extrémité.

Remarquons que la fonction analytique H ne permet de décrire la déformation de l'interface uniquement dans la région du cône optique. La déformation de l'interface proche et loin de l'axe est décrite par d'autres fonctions (voir annexe D). Nous définissons alors le demi-angle théorique du cône, noté θ_c^{th} , en considérant la valeur minimale de $\theta^{th}(r)$ (voir équation 5.14) dans la région conique (correspondant au plateau) obtenue pour $r/\omega_0 = 0.5$, ce qui conduit à :

$$\theta_c^{th} = e^{1/4} \sqrt{\frac{\pi c\omega_0\gamma}{2Pn_2}} \quad (5.16)$$

Cette expression analytique prédit alors que le demi-angle du cône décroît avec la

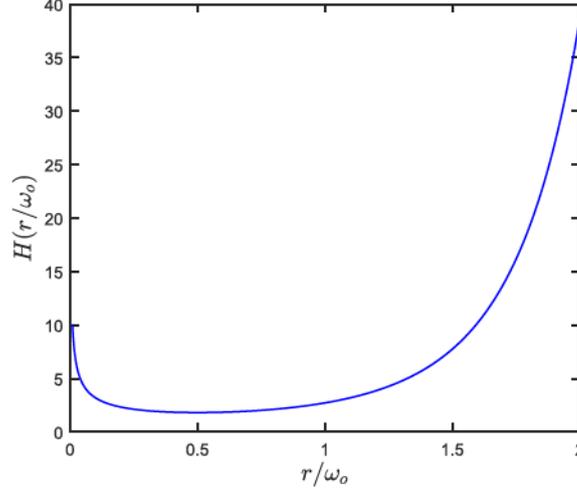


FIGURE 5.10 – Représentation de la fonction analytique $H(r/\omega_0) = \frac{e^{r^2/\omega_0^2}}{\sqrt{r/\omega_0}}$

puissance P et augmente avec la taille du faisceau ω_0 , ce qui correspond bien aux comportements observés expérimentalement. De plus, nous mettons en évidence ici une dépendance de θ_c avec les caractéristiques des fluides, notamment avec la tension interfaciale γ et l'indice optique n_2 de la phase la plus réfringente (dans laquelle le cône se forme).

De manière contre-intuitive, l'expression 5.16 ne prédit pas de dépendance directe de la morphologie conique avec le contraste d'indices optiques Δn . Notons cependant qu'en utilisant la définition de la pression de radiation caractéristique Π^* , il est possible de réécrire l'expression du demi-angle du cône sous la forme :

$$\theta_c^{th} = e^{1/4} \sqrt{\frac{\gamma/\omega_0}{\Pi^*} \frac{\Delta n}{n_2}} \quad (5.17)$$

Cette expression montre alors que l'angle du cône résulte d'un équilibre entre la pression de radiation optique Π^* et la pression de Laplace caractéristique γ/ω_0 , multipliée par le contraste relatif d'indices optiques via le rapport $\Delta n/n_2$.

Comme nous l'avons vu au chapitre 4, le contraste Δn est essentiel dans le mécanisme de déstabilisation de l'interface, nécessaire à la formation de cône optique. En utilisant l'expression de la puissance P_S au seuil d'instabilité établie au chapitre précédent, nous trouvons :

$$\theta_c^{th} = \frac{e^{1/4}}{\sqrt{4.43}} \sqrt{\frac{P_S}{P} \frac{\Delta n}{n_2}} \quad (5.18)$$

La pression caractéristique Π^* étant proportionnelle à Δn , et la puissance seuil P_S inversement proportionnelle à Δn , cette contribution du contraste d'indices optiques n'apparaît donc pas dans l'expression finale 5.16 de θ_c^{th} .

5.3.2 Confrontation avec l'expérience

Nous venons d'établir dans la partie précédente l'expression théorique du demi-angle du cône θ_c^{th} , montrant ainsi que la morphologie conique dépend fortement des paramètres de l'excitation mais également des caractéristiques intrinsèques des systèmes fluides. Nous allons donc maintenant confronter notre modèle analytique aux résultats expérimentaux afin de vérifier les différentes tendances prédites théoriquement.

Dépendance de θ_c avec les paramètres du faisceau

Nous commençons tout d'abord par vérifier le comportement du demi-angle du cône avec les paramètres du faisceau incident. L'expression 5.16 prédit une évolution de θ_c en $\sqrt{\omega_0}$, ce que nous avons pressenti lors de notre caractérisation expérimentale au vu de la hiérarchie de θ_c avec la taille du faisceau incident (voir figure 5.8). Afin de tester cette dépendance avec le *waist*, cette fois sur toute la gamme de puissance laser explorée, nous représentons l'angle du cône θ_c renormalisé par $\sqrt{\omega_0}$ en fonction de P (voir figure 5.11a). Nous vérifions ainsi la tendance en ω_0 prédite analytiquement, où tous les points expérimentaux se regroupent sur une seule courbe, ceci pour tous nos différents systèmes fluides.

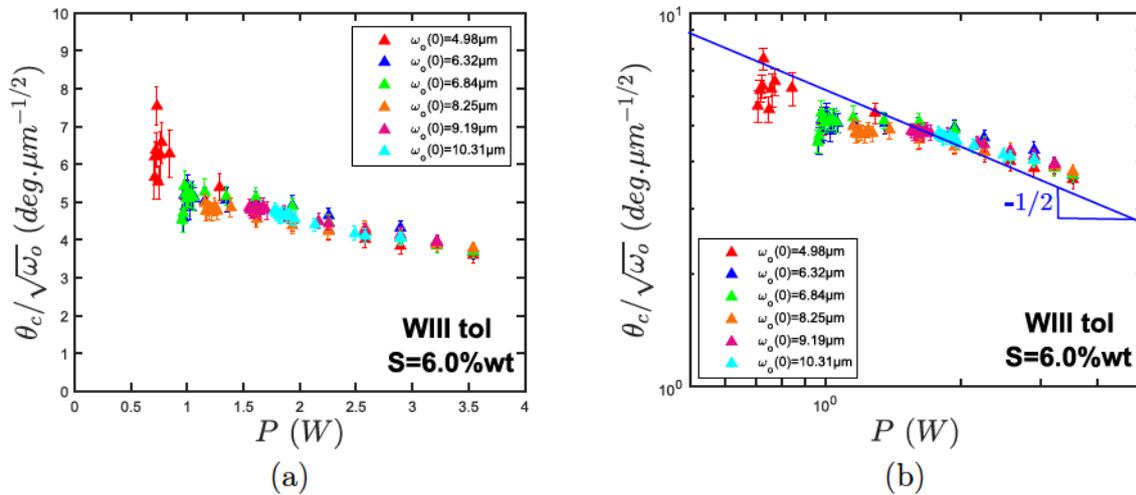


FIGURE 5.11 – Évolution du demi-angle du cône normalisé par $\sqrt{\omega_0}$ avec la puissance laser dans des phases de Winsor au toluène en représentation (a) linéaire et (b) logarithmique.

De plus, nous remarquons sur cette figure que la variation du demi-angle du cône avec la puissance semble plus prononcée lorsque celui-ci est renormalisé par $\sqrt{\omega_0}$, ce qui provient en fait de la dépendance du *waist* avec la puissance en $\omega_0(P) = \omega_0(0) (1 + g(P))$, prise en compte ici dans l'interprétation des données brutes (et caractérisée au chapitre 3). Nous pouvons d'ailleurs vérifier la dépendance de θ_c avec P en représentant le graphe précédent en échelle logarithmique, ce qui est présenté en figure 5.11b. Nous obtenons

alors une décroissance du demi-angle avec la puissance P dont l'exposant est très proche de $-1/2$, ce qui est en accord avec la variation en $1/\sqrt{P}$ attendue pour θ_c .

Dépendance de θ_c avec les caractéristiques des fluides

Afin de vérifier le comportement du demi-angle θ_c avec les caractéristiques des fluides, nous allons considérer dans un premier temps le rapport γ/n_2 de la tension interfaciale avec l'indice optique de la phase la plus réfringente. En effet, comme nous l'avons mentionné lors de notre caractérisation expérimentale, il est difficile de traiter γ indépendamment de n_2 . Nous voyons d'après l'expression théorique du demi-angle du cône (voir équation 5.16) qu'en fixant le rapport ω_0/P , nous pouvons alors étudier l'influence des propriétés des fluides sur θ_c . La figure 5.12a présente la comparaison du demi-angle expérimental avec l'expression analytique θ_c^{th} pour un rapport $\omega_0/P = 4.57 \mu\text{m}/\text{W}$ commun à tous nos systèmes fluides. La tension interfaciale considérée ici pour les points expérimentaux est celle déduite de la brisure d'une colonne liquide, cette méthode étant la seule n'utilisant pas de laser et donc pour laquelle on ne peut suspecter d'effets secondaires liés à l'onde. Nous observons sur la figure 5.12a un très bon accord entre l'expérience et le modèle analytique et vérifions ainsi la dépendance de θ_c avec la tension interfaciale (normalisée par n_2), cela sur plus de deux ordres de grandeurs grâce à l'utilisation de différents systèmes fluides.

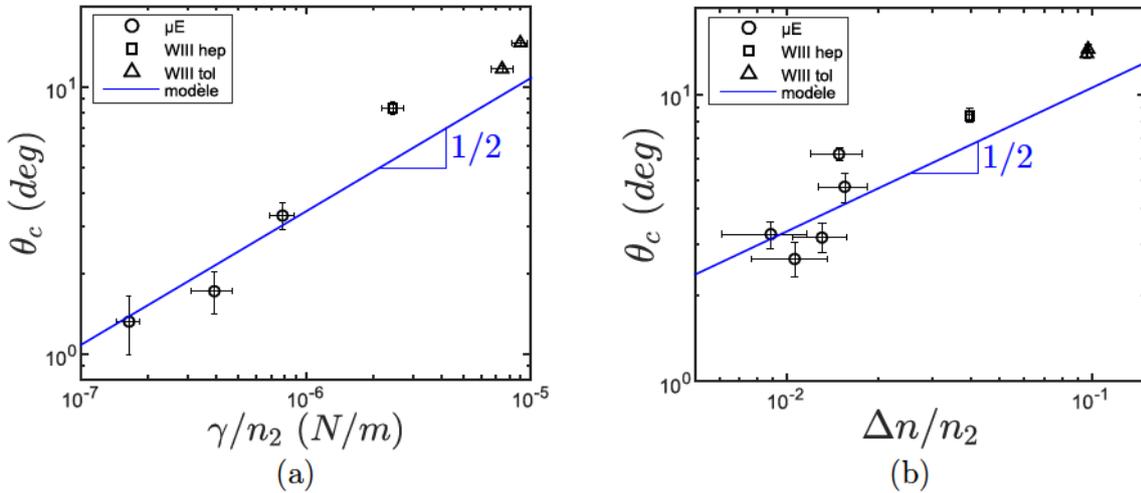


FIGURE 5.12 – Évolution du demi-angle du cône avec (a) la tension interfaciale et (b) avec le contraste d'indices de réfraction.

Comme nous l'avons montré dans la partie 5.3.1, en exprimant le demi-angle du cône en fonction de la puissance seuil P_S , nous mettons en évidence une dépendance de θ_c avec le contraste d'indice de réfraction Δn . En fixant le rapport P_S/P dans l'expression 5.18, nous pouvons alors tirer avantage de la variété de systèmes fluides utilisés pour vérifier

5.3. ÉTUDE ANALYTIQUE DES CÔNES OPTIQUES

cette tendance de façon expérimentale via le rapport $\Delta n/n_2$. De plus, la puissance au seuil d'instabilité est une grandeur directement mesurable dans nos expériences, ce qui permet de fixer simplement le rapport P_S/P . Nous comparons sur la figure 5.12b le demi-angle expérimental θ_c avec l'expression analytique pour un rapport $P_S/P = 0.91$ commun à tous nos systèmes fluides. Malgré la dispersion inhérente à la difficulté de mesure expérimentale des indices optiques dans nos systèmes (notamment les micro-émulsions quasi-critiques), nous obtenons un bon accord entre expérience et théorie, ce qui confirme le comportement en $\sqrt{\Delta n/n_2}$ du demi-angle du cône sur plus d'un ordre de grandeur. Remarquons également que la gamme de contraste d'indices explorée expérimentalement vérifie la limite de validité du modèle théorique, pour lequel $\delta = \Delta n/n_2 \ll 1$.

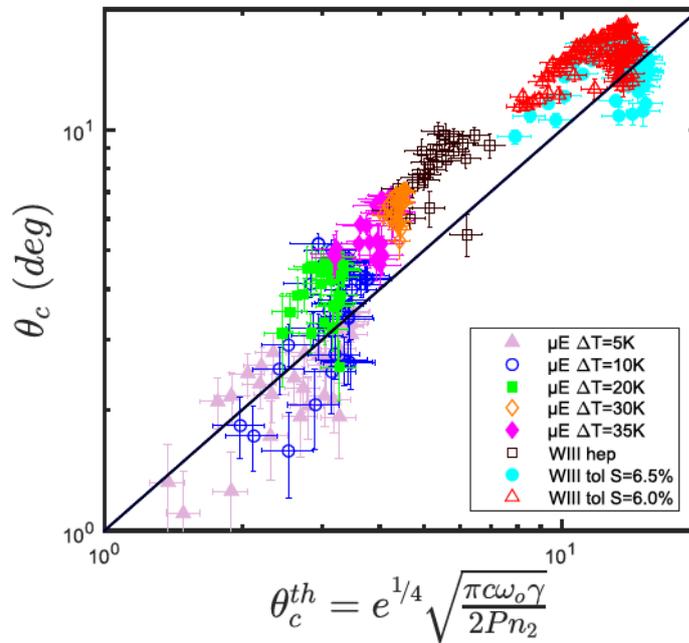


FIGURE 5.13 – Évolution du demi-angle du cône expérimental θ_c en fonction de l'expression analytique θ_c^{th} pour tous les systèmes fluides. La ligne noire correspond à la fonction $y = x$.

Nous venons de vérifier le comportement du demi-angle du cône avec chaque paramètre de l'expérience, indépendamment les uns des autres. Afin de conforter de manière plus globale la pertinence de notre modèle théorique, nous représentons sur la figure 5.13 le demi-angle du cône expérimental θ_c , pour tous nos systèmes fluides, en fonction de l'expression analytique θ_c^{th} établie (équation 5.16). Nous observons alors que tous nos points expérimentaux se rassemblent autour de la droite d'équation $y = x$, montrant ainsi que le modèle théorique est très bien vérifié, et cela sur plus d'un ordre de grandeur. Notre modèle permet ainsi de décrire le comportement expérimental du demi-angle des cônes optiques sur la base d'un équilibre entre pression de radiation optique et pression de Laplace.

Ajoutons que l'accord obtenu entre expérience et théorie est fortement renforcé par le fait qu'aucun paramètre ajustable n'est utilisé dans le modèle analytique. Nous mettons donc en évidence ici un comportement global à tous les systèmes fluides utilisés, et montrons qu'il est possible de contrôler optiquement la morphologie conique des interfaces liquides en ajustant à la fois les paramètres de l'excitation laser et les caractéristiques des fluides. Nous notons toutefois la présence de dispersion dans les données, ce qui n'est pas surprenant compte tenu de la variété de systèmes fluides utilisés, et qui provient notamment de la difficulté expérimentale à caractériser de manière très précise les propriétés de nos échantillons. Nous discuterons par la suite d'autres effets qui pourraient être à l'origine des écarts observés.

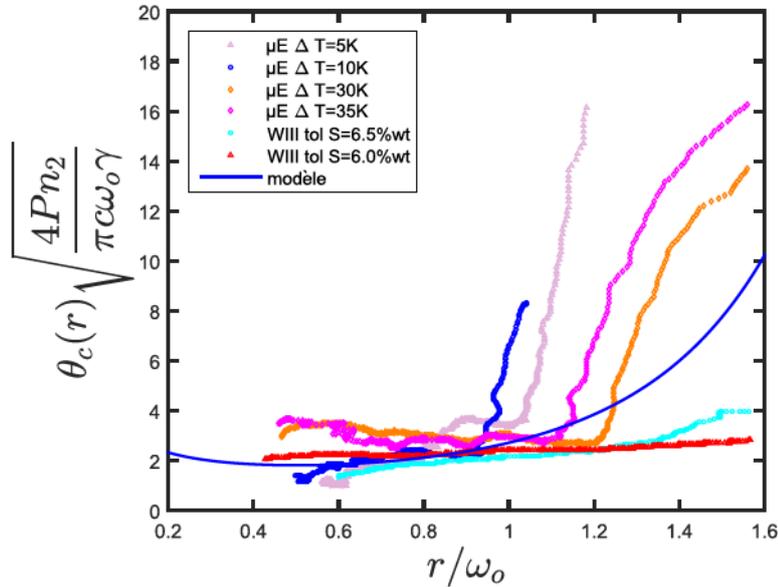


FIGURE 5.14 – Profil radial du demi-angle local de déformation $\theta(r)$ normalisé à partir de l'expression 5.14 pour différents systèmes fluides. La ligne bleue correspond à la fonction analytique $H(r/\omega_0)$.

Nous nous sommes intéressés jusqu'ici au comportement du demi-angle du cône optique, dont l'expression analytique θ_c^{th} découle de la minimisation de la fonction $H(r/\omega_0)$, intervenant dans l'expression de $\theta^{th}(r)$, qui apparaît en $r/\omega_0 = 0.5$ (voir partie 5.3.1). Nous avons ainsi vérifié l'accord entre expérience et modèle pour une valeur particulière de r/ω_0 qui correspond à la valeur minimale du demi-angle dans la région du plateau attribué au cône optique. Nous allons maintenant vérifier si le modèle théorique permet de prédire le profil radial de la déformation. Pour ce faire, nous représentons les profils expérimentaux de l'angle de déformation $\theta(r)$ renormalisés en fonction de la distance r/ω_0 pour différents systèmes (voir figure 5.14). Nous constatons que les profils de déformations expérimentaux présentent un plateau, traduisant l'émergence d'une déformation conique, comme dans le cadre du modèle théorique. Il est important de remarquer que les défor-

mations coniques obtenues expérimentalement s'ouvrent généralement vers un jet (ou une aiguille) liquide, ce qui ne permet pas d'explorer la région $r/\omega_0 < 0.45$, contrairement au modèle théorique qui prévoit des cônes optiques fermés à leur extrémité. Néanmoins, la comparaison des profils expérimentaux renormalisés dans la région $0.45 < r/\omega_0 < 1.2$ conduit à un accord satisfaisant avec le profil théorique, dont le plateau est plus étroit ($0.3 < r/\omega_0 < 0.7$).

Remarquons que la différence de comportements entre les profils expérimentaux et la courbe théorique pour $r/\omega_0 > 1.2$ est tout à fait normal. En effet, la solution $\theta^{th}(r)$ donnée par l'équation 5.14 n'est valable que lorsque $\theta_i > \theta_{RT}$, ce qui est vérifié pour $0.3 < r/\omega_0 < 1.2$ d'après le modèle analytique. Proche et loin de l'axe du faisceau, l'angle local de déformation $\theta(r)$ n'est plus décrit par la fonction $H(r)$ mais par d'autres fonctions (voir annexe D).

5.4 Modélisation numérique

5.4.1 Principe

L'étude numérique réalisée ici se base sur la résolution de l'équation d'équilibre des pressions agissant sur une interface liquide déformée par pression de radiation optique. En prenant en compte les effets de la gravité, cette équation est donnée par :

$$\Pi_{rad}(r) = \gamma\kappa(r) - \Delta\rho gh(r) \quad (5.19)$$

Il est généralement d'usage dans une étude numérique de manipuler des grandeurs sans dimension. Pour ce faire, nous divisons alors l'équation 5.19 par le rapport γ/ω_0 , qui n'est rien d'autre que la pression de Laplace dans le cas de faibles déformations (voir chapitre 2). Nous obtenons ainsi :

$$\frac{\omega_0}{\gamma}\Pi_{rad}(r) = \omega_0\kappa(r) - \frac{\Delta\rho g\omega_0}{\gamma}h(r) \quad (5.20)$$

En choisissant la taille du faisceau ω_0 comme longueur caractéristique du problème, nous définissons les grandeurs sans dimensions suivantes :

$$\tilde{h} = \frac{h}{\omega_0}; \quad \tilde{r} = \frac{r}{\omega_0}; \quad \tilde{\kappa} = \kappa\omega_0 \quad ; \quad \tilde{\Pi}_{rad} = \Pi_{rad}\frac{\omega_0}{\gamma}$$

ce qui conduit à

$$\tilde{\Pi}_{rad}(\tilde{r}) = \tilde{\kappa}(\tilde{r}) - Bo \tilde{h}(\tilde{r}) \quad (5.21)$$

où $Bo = \frac{\Delta\rho g\omega_0^2}{\gamma}$ est le nombre de Bond optique.

Dans l'équation 5.21, $\tilde{\Pi}_{rad}$ représente la pression de radiation adimensionnée, dont

nous pouvons établir l'expression en considérant l'équation 2.9 présentée au chapitre 2 :

$$\tilde{\Pi}_{rad} = \frac{2Pn_2}{\pi c\omega_0\gamma} \cos^2 \theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \exp(-2\tilde{r}^2) \quad (5.22)$$

Un faisceau arrivant depuis le milieu d'indice n_2 en incidence θ_i à l'interface étant réfracté suivant la loi de Snell-Descartes $n_2 \sin \theta_i = n_1 \sin \theta_t$, cela implique $\frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} = \frac{n_1 \cos \theta_t}{n_2 \cos \theta_i}$. De plus, les coefficients de Fresnel sont tels que $R(\theta_i, \theta_t) = 1 - T(\theta_i, \theta_t)$, ce qui permet de réécrire la pression de radiation adimensionnée sous la forme :

$$\tilde{\Pi}_{rad}(\tilde{r}, \theta_i, \theta_t) = \Pi_0 \frac{g(\theta_i, \theta_t)}{g(0, 0)} \exp(-2\tilde{r}^2) \quad (5.23)$$

où $\Pi_0 = \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0\gamma} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right)$ est le nombre sans dimension permettant de comparer de manière relative les effets optiques aux effets capillaires et $g(\theta_i, \theta_t)$ une fonction prenant en compte le comportement spécifique de la pression de radiation vis-à-vis de l'angle de réflexion totale θ_{RT} :

$$g(\theta_i, \theta_t) = \begin{cases} \frac{n_1}{n_2} \cos \theta_i \left[2 \frac{n_2}{n_1} \cos \theta_i - T(\theta_i, \theta_t) \left(\frac{n_2}{n_1} \cos \theta_i + \cos \theta_t \right) \right] & (\theta_i < \theta_{RT}) \\ 2 \cos^2 \theta_i & (\theta_i > \theta_{RT}) \end{cases} \quad (5.24)$$

Le but étant d'étudier numériquement les déformations d'interfaces liquides induites par laser, notamment aux fortes puissances, nous considérons ici le terme de courbure dans sa forme exacte. En développant ce terme, nous trouvons :

$$\tilde{\kappa}(\tilde{r}) = \frac{1}{\tilde{r}} \frac{d}{d\tilde{r}} \left(\frac{\tilde{r}\tilde{h}'}{\sqrt{1 + \tilde{h}'^2}} \right) = \frac{1}{(1 + \tilde{h}'^2)^{3/2}} \left(\tilde{h}'' + \frac{\tilde{h}'^3}{\tilde{r}} + \frac{\tilde{h}'}{\tilde{r}} \right) \quad (5.25)$$

En remplaçant le terme de courbure $\tilde{\kappa}(\tilde{r})$ par cette expression dans l'équation 5.21, nous trouvons que la hauteur de déformation adimensionnée $\tilde{h} = h/\omega_0$ d'une interface liquide soumise à la pression de radiation optique est régie par une équation différentielle du second ordre :

$$\tilde{h}'' = \left(\tilde{\Pi}_{rad} + Bo \tilde{h} \right) \left(1 + \tilde{h}'^2 \right)^{3/2} - \frac{\tilde{h}'^3}{\tilde{r}} - \frac{\tilde{h}'}{\tilde{r}} \quad (5.26)$$

La résolution numérique de cette équation différentielle ordinaire (ou *ODE*) permet donc de déduire le profil $\tilde{h}(\tilde{r})$ de l'interface déformée, en connaissant les 3 paramètres caractéristiques sans dimension : nombre de Bond optique Bo , Π_0 et rapport d'indices optiques n_2/n_1 .

Le calcul numérique du profil de l'interface se fait par une méthode de Runge-Kutta (4,5) dans un domaine de taille finie R (généralement égale à $5\omega_0$) dans lequel nous impo-

sous certaines conditions aux limites. Loin de l'axe du faisceau laser, l'interface n'est pas déformée ce qui implique $\tilde{h}(R) = 0$. De plus, nous imposons que $\tilde{h}'(0) = 0$ ce qui traduit le fait que la déformation soit de hauteur finie.

Afin de résoudre l'équation différentielle 5.26, nous devons également ajouter une condition initiale sur la hauteur de déformation $\tilde{h}(0)$ sur l'axe du faisceau. Pour ce faire, nous imposons que la hauteur de déformation soit comprise entre deux valeurs extrémales fixées arbitrairement à $\tilde{h}_{min}(0) = 0$ et $\tilde{h}_{max}(0) = 50$ et nous posons $\tilde{h}(0) = (\tilde{h}_{min}(0) + \tilde{h}_{max}(0)) / 2$. Avec ces conditions, nous obtenons alors un profil numérique de l'interface déformée qui respecte ou non la condition $\tilde{h}(r = R) = 0$. Lorsque cette condition n'est pas respectée, le profil est alors recalculé pour une nouvelle condition initiale sur la hauteur $\tilde{h}(0)$ déterminée par dichotomie. Par exemple, lorsque $\tilde{h}^{i=1}(R) > 0$ à la première itération, la hauteur de déformation est en quelques sortes trop grande et nous imposons alors à la seconde itération $\tilde{h}^{i=2}(0) = (\tilde{h}^{i=1}(0) + h_{min}(0)) / 2$. Le profil de déformation est ainsi calculé numériquement par itérations successives jusqu'à ce que la condition $\tilde{h}(r = R) = 0$ soit vérifiée.

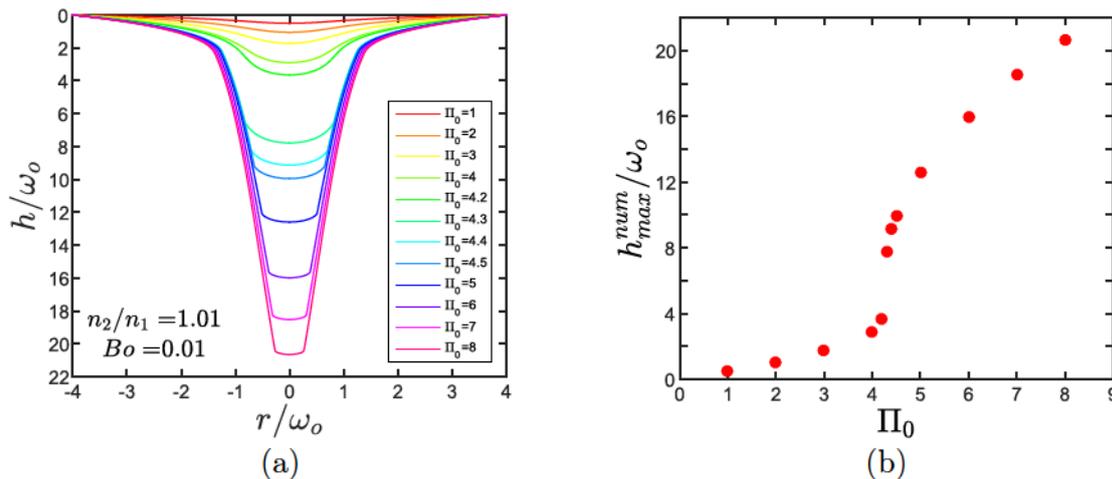


FIGURE 5.15 – (a) Profils numériques de déformation d'une interface liquide soumise à la pression de radiation optique pour différentes valeurs de Π_0 . Le rapport d'indices optiques ainsi que le nombre de Bond sont fixés respectivement à $n_2/n_1 = 1.01$ et $Bo = 0.01$. (b) Évolution de la hauteur maximale de déformation adimensionnée correspondante en fonction de Π_0 .

Un exemple de profils de déformations $\tilde{h}(\tilde{r})$ obtenus numériquement par cette méthode est présenté en figure 5.15a, pour différents Π_0 et en fixant des valeurs typiques de l'expérience : $Bo = 0.01$ et $n_2/n_1 = 1.01$. Nous retrouvons ainsi numériquement l'existence des deux régimes de déformations de l'interface mis en évidence expérimentalement au chapitre 4. Nous observons en effet un régime linéaire de la hauteur maximale de déformation \tilde{h}_{max} pour les plus petits Π_0 (voir figure 5.15b), correspondant à des déformations de faible amplitude, puis une déstabilisation de l'interface vers des déformations de grande

amplitude et de grand rapport d'aspect pour les valeurs de Π_0 les plus grandes. Notons que le seuil d'instabilité trouvé numériquement ici est tel que $4.2 < \Pi_{0,num}^{seuil} < 4.3$ ce qui est en bon accord avec le modèle théorique présenté au chapitre précédent où nous avons établi $\Pi_0^{seuil} \simeq 8.86 \frac{n_2}{(n_1+n_2)}$, ce qui donne $\Pi_0^{seuil} \simeq 4.45$ pour le rapport d'indices optiques $n_2/n_1 = 1.01$ considéré ici.

Comme nous pouvons le constater sur la figure 5.15a, la résolution numérique de l'équation différentielle 5.26 prédit également des déformations coniques de l'interface liquide lorsque la pression de radiation optique devient importante (comparativement aux effets capillaires et de gravité). Ce résultat est assez surprenant compte tenu du fait qu'aucune hypothèse quant à l'incidence du faisceau en réflexion totale sur l'interface n'ait été émise ici. Nous pouvons alors définir un demi-angle du cône numérique θ_c^{num} , qui correspond à la valeur de l'angle local $\theta(\tilde{r})$ pour lequel la pente $\tilde{h}'(\tilde{r})$ est maximale.

5.4.2 Influence de la gravité sur les déformations d'interfaces : comparaison avec le modèle analytique

Dans cette partie, nous allons étudier l'influence de la gravité sur la morphologie des cônes optiques et plus particulièrement sur le demi-angle de ces derniers. Nous pourrions ainsi comparer les résultats numériques au modèle analytique, dans lequel tout effet de la gravité a été négligé.

Comme nous venons de le montrer dans la partie 5.4.1, la déformation d'une interface liquide par pression de radiation peut être décrite à l'aide de 3 grandeurs caractéristiques sans dimension : le nombre de Bond optique Bo qui compare les effets de gravité aux effets capillaires, le nombre Π_0 qui compare les effets optiques aux effets capillaires et le rapport d'indices de réfraction n_2/n_1 . Cette représentation nous permet ainsi de découpler l'influence relative des différents effets dans l'étude numérique, ce qui n'est pas nécessairement réalisable dans l'expérience. Par exemple, en variant expérimentalement la taille du faisceau ω_0 , nous modifions (par définition) Π_0 et Bo de façon simultanée. Il en est de même en modifiant la tension interfaciale γ ou encore la puissance P (dans la mesure où ω_0 varie avec P).

Afin d'étudier uniquement l'influence de la gravité, nous fixons donc la valeur des grandeurs Π_0 et n_2/n_1 et nous considérons une variation du nombre de Bond optique $Bo = \Delta\rho g \omega_0^2 / \gamma$. En fixant la valeur de Π_0 , l'importance relative des effets de pression de radiation optique par rapport aux effets capillaires ne varie donc pas. Afin de se placer dans le régime où les cônes optiques sont observés ($\Pi_0 > \Pi_0^{seuil}$), nous fixons $\Pi_0 = 6$ ce qui correspond à une valeur typique de nos expériences. La variation du demi-angle du

5.4. MODÉLISATION NUMÉRIQUE

cône θ_c^{num} avec le nombre de Bond optique est présenté sur la figure 5.16a pour différents rapport d'indices n_2/n_1 , correspondant à des valeurs typiques pour nos 3 systèmes fluides (microémulsions quasi-critiques et phases de Winsor à l'heptane et au toluène).

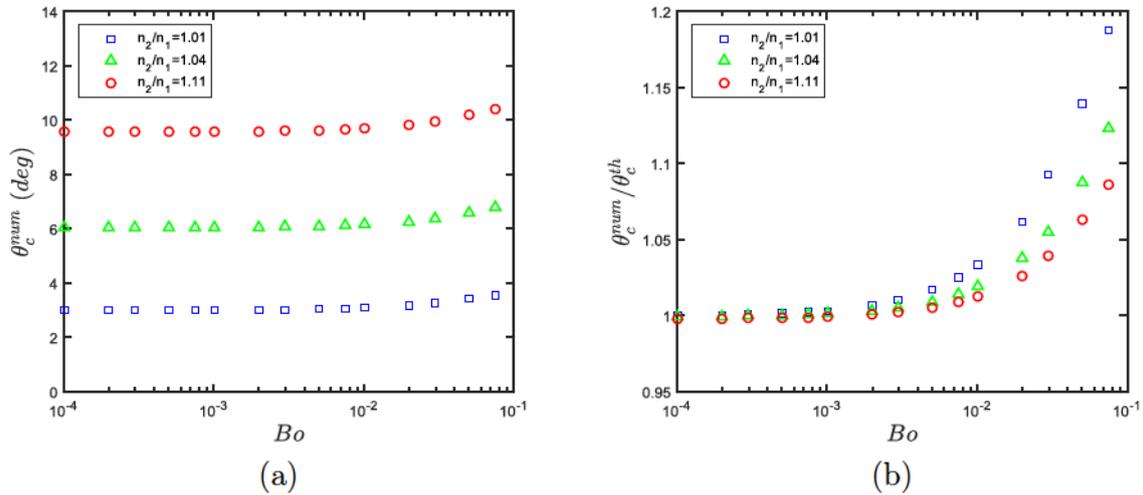


FIGURE 5.16 – (a) Évolution du demi-angle du cône numérique θ_c^{num} en fonction du nombre de Bond optique $Bo = \frac{\Delta\rho g \omega_0^2}{\gamma}$ pour différents rapports d'indices de réfraction n_2/n_1 . (b) Évolution du demi-angle du cône numérique adimensionné par l'angle théorique en fonction du nombre de Bond optique pour les mêmes rapports n_2/n_1 . Nous fixons ici $\Pi_0 = 6$.

Comme nous le constatons sur la figure 5.16a, l'influence de la gravité sur la morphologie conique est faible. En effet, le demi-angle numérique du cône varie assez peu avec le nombre de Bond optique, et reste quasi-constant sur plusieurs décades, notamment dans la gamme de Bo explorée dans la plupart de nos expériences ($10^{-3} < Bo < 10^{-2}$), et cela pour les différents rapports d'indices n_2/n_1 étudiés. Nous notons tout de même une légère augmentation de θ_c^{num} avec Bo , qui devient plus prononcée lorsque les effets de gravité deviennent plus importants (pour $Bo > 10^{-2}$).

Intuitivement nous pouvons comprendre ce résultat. En effet, plus les effets de gravité deviennent importants et plus la poussée d'Archimède tend à s'opposer à la déformation de l'interface, qui est en quelque sorte "poussée vers le haut" ce qui conduit à une augmentation de l'angle du cône liquide. Notons que ce résultat quant à l'influence de la gravité est semblable à ce qui a été observé lors de l'étude expérimentale menée par Elele *et al.*, dans laquelle les déformations coniques de gouttes liquides par champ électrique présentent un demi-angle légèrement plus faible en micro-gravité que sous gravité terrestre [97].

Nous venons de montrer que la gravité n'a que peu d'influence sur le demi-angle du cône, ce à quoi nous pouvions nous attendre étant données les valeurs de Bo mises en jeu.

Nous pouvons aller encore plus loin en comparant maintenant les valeurs du demi-angle du cône prédites numériquement et théoriquement. En effet, il est possible de réécrire l'expression analytique 5.16 établie précédemment pour le demi-angle du cône en fonction des grandeurs caractéristiques sans dimensions utilisées dans notre étude numérique :

$$\theta_c^{th} = e^{1/4} \sqrt{\frac{\pi c \omega_0 \gamma}{2 P n_2}} = e^{1/4} \sqrt{\frac{2}{\Pi_0} \frac{n_2/n_1 - 1}{n_2/n_1 + 1}} \quad (5.27)$$

où $\Pi_0 = \frac{4 P n_2}{\pi c \omega_0 \gamma} \left(\frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2} \right)$ le nombre sans dimension permettant de comparer les effets de la pression de radiation optique par rapport aux effets capillaires et n_2/n_1 est le rapport des indices de réfraction.

En traçant le rapport entre l'angle numérique θ_c^{num} et théorique θ_c^{th} en fonction du nombre de Bond optique (voir figure 5.16b), nous obtenons alors un très bon accord entre les deux approches, dans la limite où les effets capillaires dominent les effets de gravité, et ceci pour différents rapports d'indices optiques. Nous voyons d'après la figure 5.16b que lorsque les effets de gravité deviennent importants (i.e. au-delà de $Bo = 10^{-2}$), l'accord devient alors moins bon et l'approche numérique prédit un demi-angle du cône supérieur à l'angle théorique.

Ce résultat valide ainsi complètement le modèle analytique pour la gamme $Bo < 10^{-2}$, ce qui correspond à la plupart de nos expériences. En revanche, lorsque la taille de l'excitation ω_0 devient importante, celle-ci devient supérieure à la longueur capillaire l_c et les effets de gravité ne sont alors plus négligeables, ce qui conduit à une augmentation du demi-angle de l'ordre de quelques pourcents par rapport à la valeur prédite théoriquement. Cela permet donc d'expliquer en partie la dispersion observée entre expérience et théorie sur la figure 5.13, pour laquelle le nombre de Bond optique peut varier jusqu'à $Bo \simeq 0.1$, en ne considérant pas les phases de Winsor à l'heptane. Ce système fluide est en effet celui qui possède le contraste de densité le plus important ($\Delta\rho = 321 \text{ kg/m}^3$), conduisant à $Bo \simeq 0.2$ pour les tailles de faisceau ω_0 les plus grandes, et pour lequel le désaccord avec la prédiction théorique est logiquement le plus important. En extrapolant la courbe 5.16b pour le rapport d'indice $n_2/n_1 = 1.04$ correspondant aux phases de Winsor à l'heptane, nous estimons le demi-angle du cône numérique comme étant supérieur d'environ 50% à la valeur attendue théoriquement. Cette estimation semble plutôt cohérente avec les résultats présentés sur la figure 5.13 où les demi-angles expérimental et théorique valent typiquement $\theta_c \simeq 8^\circ$ et $\theta_c^{th} \simeq 5^\circ$ pour les phases de Winsor à l'heptane.

5.4.3 Comparaison quantitative avec l'expérience

Dans cette partie, nous allons étudier la dépendance du demi-angle du cône numérique θ_c^{num} avec les autres paramètres sans dimension caractéristiques de l'expérience (Π_0 et n_2/n_1), afin de comparer les tendances numériques obtenues aux comportements expérimentaux.

Dans un premier temps, nous étudions l'influence de la variation de l'effet relatif de la pression de radiation optique par rapport à la pression de Laplace sur le demi-angle du cône. Pour ce faire, nous fixons donc la valeur de Bo (i.e. l'effet de la gravité par rapport à la capillarité) et nous considérons une variation du nombre sans dimension Π_0 pour un rapport d'indices optiques $n_2/n_1 = 1.0107$, correspondant à un système fluide expérimental (ici des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10$ K). Afin d'observer la correction apportée sur les valeurs de θ_c par la prise en compte de la gravité, nous choisissons $Bo = 0.027$ qui est une valeur expérimentale pour laquelle l'expression analytique θ_c^{th} conduit à des valeurs inférieures à θ_c^{num} (d'après la figure 5.16b). La variation du demi-angle du cône numérique en fonction de Π_0 est présentée sur la figure 5.17, sur laquelle nous comparons les résultats numériques aux données expérimentales ainsi qu'au modèle théorique (calculé à partir de l'équation 5.27).

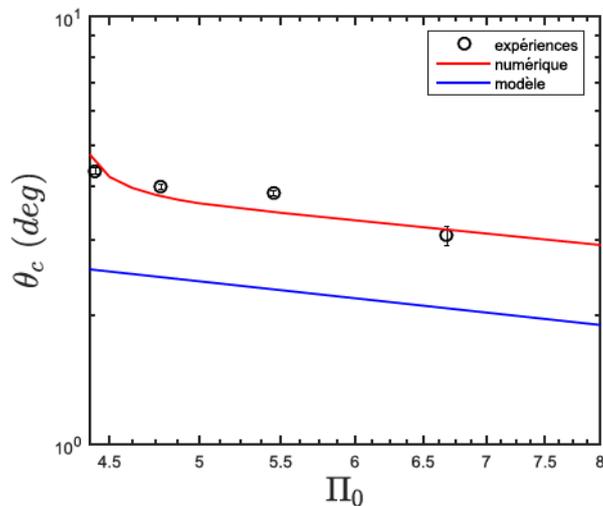


FIGURE 5.17 – Évolution du demi-angle du cône θ_c en fonction du paramètre sans dimension $\Pi_0 = \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0\gamma} \left(\frac{n_2-n_1}{n_1+n_2} \right)$ pour $Bo = 0.027$ et $n_2/n_1 = 1.0107$, ce qui correspond à des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10$ K.

Nous remarquons sur cette figure que le demi-angle du cône numérique décroît avec Π_0 de façon très similaire avec le demi-angle analytique θ_c^{th} dont la formule 5.27 a été établie en fonction de Π_0 . Le demi-angle numérique décroît donc également en $\Pi_0^{-1/2}$ malgré les effets de gravité relativement importants considérés dans cet exemple. Nous notons ici que

la tendance numérique avec Π_0 est légèrement différente très proche du seuil d'instabilité. De plus, la tendance numérique décrit très bien les comportements expérimentaux avec Π_0 . En effet une augmentation de Π_0 correspond à une augmentation de la puissance P , ou à une diminution de la taille du faisceau ω_0 ou de la tension interfaciale γ dans l'expérience. Puisque θ_c^{num} décroît avec Π_0 , nous confirmons donc numériquement que le demi-angle du cône diminue avec P et augmente avec ω_0 ou γ . Cette tendance est également confirmée par l'accord obtenu entre les points expérimentaux et la courbe numérique sur la figure 5.17.

Notons que nous avons considéré ici un système fluide expérimental donné de rapport d'indices optiques n_2/n_1 fixé, et donc de tension interfaciale γ fixée. Le nombre de Bond optique étant constant, nous vérifions en quelques sortes la variation du demi-angle du cône avec la puissance laser (i.e. $\theta_c \propto P^{-1/2}$).

Comme nous le remarquons sur la figure 5.16, le demi-angle du cône est d'autant plus grand que le rapport d'indices optiques n_2/n_1 est important. Nous allons donc nous intéresser maintenant à la variation du demi-angle du cône avec n_2/n_1 . De la même manière que précédemment, nous choisissons des valeurs expérimentales pour Π_0 et Bo de telle manière que celles-ci soient communes simultanément à nos différents systèmes fluides. La difficulté à obtenir des valeurs communes pour ces paramètres nous amène donc à considérer les valeurs moyennes afin de réaliser notre étude numérique, ici nous considérons $\langle \Pi_0 \rangle = 6$ et $\langle Bo \rangle = 0.005$. La variation du demi-angle du cône numérique avec le contraste d'indices optiques est présentée sur la figure 5.18, sur laquelle θ_c est alors tracé en fonction de $\delta = \Delta n/n_2$, qui est relié au rapport d'indices optiques par $n_2/n_1 = 1/(1-\delta)$.

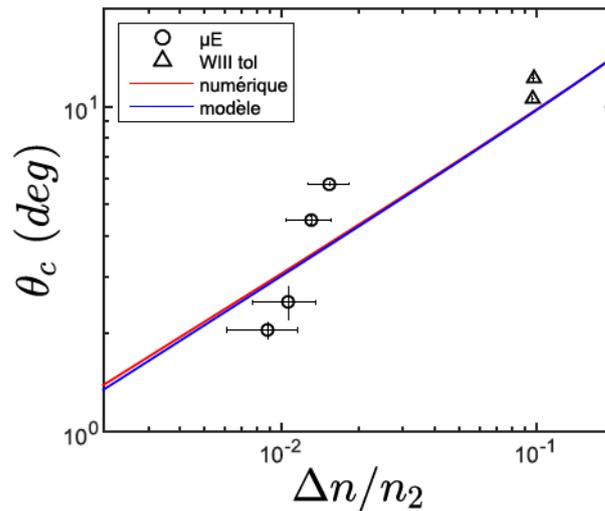


FIGURE 5.18 – Évolution du demi-angle du cône θ_c avec le contraste d'indices de réfraction.

Nous observons que le demi-angle du cône numérique varie en $\sqrt{\Delta n/n_2}$, ce qui corres-

pond bien à la tendance expérimentale, déjà mise en évidence dans la partie 5.3.2, et celle prédite par le modèle (voir expression 5.18). Nous remarquons également que le demi-angle prédit théorique est très proche de θ_c^{num} , ce qui n'est pas surprenant compte tenu de la valeur du nombre de Bond considérée ici. De plus, nous pouvons réécrire l'expression analytique θ_c^{th} en fonction de $\delta = \Delta n/n_2$ à partir de l'expression 5.27 :

$$\theta_c^{th} = e^{1/4} \sqrt{\frac{1}{\Pi_0} \frac{2\delta}{2-\delta}} \quad (5.28)$$

Dans la limite $\delta \ll 1$, ce qui est le cas expérimentalement, nous obtenons alors :

$$\theta_c^{th} = e^{1/4} \sqrt{\frac{1}{\Pi_0}} \delta = e^{1/4} \sqrt{\frac{1}{\Pi_0} \frac{\Delta n}{n_2}} \quad (5.29)$$

Cette expression permet donc de rendre compte des tendances numérique et analytique observées ici.

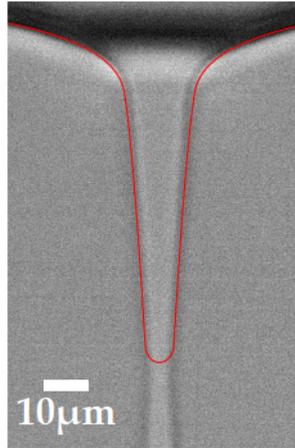


FIGURE 5.19 – *Superposition d'un profil numérique de déformation d'interface liquide à une image de déformation expérimentale dans des micro-émulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10K$. La puissance laser correspondante est $P = 496 \text{ mW}$ et la taille du faisceau est $\omega_0 = 5.78 \text{ }\mu\text{m}$.*

Nous venons donc de montrer dans cette partie que l'étude numérique permet de décrire assez fidèlement les morphologies coniques observées, y compris dans la limite du modèle théorique où les effets de la gravité deviennent non négligeables. Ainsi, en implémentant les paramètres de l'expérience dans notre simulation numérique nous pouvons prédire le profil théorique de déformation de l'interface liquide dans le régime des cônes optiques. Un exemple de profil numérique superposé à une image de déformation expérimentale dans des micro-émulsions quasi-critiques à $\Delta T = 10K$ est présenté sur la figure 5.19. L'étude numérique, tout comme le modèle théorique, prédit ici des cônes optiques fermés à leur extrémité et ne permet donc pas de décrire le jet liquide observé expérimentalement. Nous obtenons en revanche un très bon accord sur la partie conique de la

déformation mis, comme nous le voyons sur la figure 5.19.

5.5 Vers une vision plus globale des cônes optiques

Nous venons d'établir dans ce chapitre l'expression analytique du demi-angle des cônes optiques sur la base d'une compétition entre la pression de radiation optique et la pression capillaire, lorsque les effets de gravité sont négligeables. La confrontation de ce modèle théorique avec nos données expérimentales a alors révélé un bon accord, ce qui témoigne d'une bonne compréhension du phénomène. De plus, une étude numérique a permis de mettre en évidence une correction du modèle à apporter lorsque les effets de gravité deviennent importants, ce à quoi nous pouvons nous attendre. Dans cette partie, nous allons donc discuter de l'influence d'autres effets qui pourraient également être pris en compte dans le modèle théorique afin d'aboutir à une vision plus globale des cônes optiques.

5.5.1 Influence de la divergence du faisceau

Le modèle théorique présenté dans ce chapitre pour décrire la physique des cônes optiques est basé sur l'équation d'équilibre de l'interface, dans laquelle nous avons utilisé l'expression 2.9 de la pression de radiation optique établie au chapitre 2, que nous rappelons ici :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{2Pn_2}{\pi c \omega_0^2} \cos^2 \theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (5.30)$$

Cette expression suit un schéma selon lequel le faisceau laser incident est considéré comme une onde plane, se réfractant et se réfléchissant sur une interface d'orientation locale θ_i quelconque (ce qui définit l'angle d'incidence). Le faisceau laser est alors perçu comme un cylindre de lumière de rayon ω_0 , dont le profil d'intensité est gaussien. En réalité, le rayon du faisceau $\omega(z)$ varie le long de son axe suivant la formule :

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (5.31)$$

où $\omega_0 = \omega(z = 0)$ est le *waist* et $z_R = n_2 \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda_0}$ est la longueur de Rayleigh (approximation paraxiale).

Lorsque $z < z_R$, le faisceau peut être considéré comme une onde plane. Pour une distance $z > z_R$, le faisceau se comporte en revanche comme une onde sphérique divergente. Rappelons que dans nos expériences, le faisceau laser est focalisé à l'interface liquide non déformée (pris comme origine $z = 0$). Il vient alors la question de l'effet de la divergence du faisceau sur les déformations coniques observées, celle-ci étant de grande amplitude.

Afin de répondre à cette question, il convient donc de comparer la hauteur maximale de déformation de l'interface liquide, i.e. la hauteur h_c des cônes optiques, à la longueur de Rayleigh z_R .

Nous avons montré que la morphologie conique, et plus particulièrement le demi-angle, pouvait être contrôlé par les paramètres du faisceau laser. Nous supposons logiquement qu'il en est de même pour la hauteur du cône h_c , dans l'hypothèse où h_c est étroitement liée à θ_c . En première approximation, nous pouvons supposer (dans la limite des petits angles θ_c) :

$$\tan \theta_c \simeq \theta_c = \frac{1}{dh/dr} \quad (5.32)$$

La hauteur du cône se déduit alors du demi-angle $\theta_c(r)$ par :

$$h_c = h(\infty) - h(0) \simeq \int_0^\infty \frac{1}{\theta_c(r)} dr \quad (5.33)$$

où $h(0)$ et $h(\infty)$ sont respectivement les hauteurs de déformations sur l'axe ($r = 0$) et loin de l'axe. En utilisant l'expression analytique 5.14 pour $\theta_c(r)$, nous trouvons donc :

$$h_c \simeq \sqrt{\frac{4Pn_2}{\pi c \omega_0 \gamma}} \int_0^\infty \sqrt{r/\omega_0} e^{-r^2/\omega_0^2} dr \quad (5.34)$$

En posant $u = r/\omega_0$, nous obtenons alors :

$$\int_0^\infty \sqrt{r/\omega_0} e^{-r^2/\omega_0^2} dr = \int_0^\infty \omega_0 \sqrt{u} e^{-u^2} du \simeq 0.6127 \omega_0 \quad (5.35)$$

La hauteur du cône optique h_c peut donc s'exprimer par :

$$h_c \simeq 0.6127 \sqrt{\frac{4Pn_2 \omega_0}{\pi c \gamma}} \quad (5.36)$$

D'après cette formule, la hauteur de la déformation conique est donc d'autant plus grande que la puissance P ou la taille du faisceau ω_0 est importante, ou que la tension interfaciale est faible, ce qui semble cohérent.

Nous pouvons maintenant comparer la hauteur du cône h_c à la longueur de Rayleigh. D'après les résultats établis, nous obtenons :

$$\frac{h_c}{z_R} \propto \frac{\sqrt{\omega_0}}{\omega_0^2} \text{ soit } \frac{h_c}{z_R} \propto \frac{1}{\omega_0^{3/2}} \quad (5.37)$$

Ce résultat montre donc la hauteur du cône h_c peut être comparable à la longueur de Rayleigh lorsque la taille du faisceau ω_0 est très faible. En revanche, en augmentant le

waist ω_0 , z_R devient alors très grand devant h_c et le faisceau peut alors être traité comme une onde plane. Afin de vérifier cette hypothèse et de conclure sur un éventuel effet de la divergence, nous avons mesuré expérimentalement les hauteurs des cônes optiques h_c pour nos différents systèmes fluides.

Les déformations observées étant généralement ouvertes vers un jet liquide, nous déterminons expérimentalement h_c comme étant la distance entre la position de l'interface liquide non déformée et le point d'intersection de l'ajustement linéaire sur la partie conique (voir figure 5.5c). Nous présentons sur la figure 5.20 l'évolution du rapport h_c/z_R en fonction de la puissance laser, pour deux systèmes fluides différents pour lesquels nous observons respectivement les valeurs minimales et maximales pour le demi-angle θ_c . Comme le suggère notre modèle simple, la hauteur du cône h_c est d'autant plus grande que θ_c est petit. Le choix de ces systèmes nous permet ainsi de balayer toute la gamme de hauteurs h_c rencontrées expérimentalement.

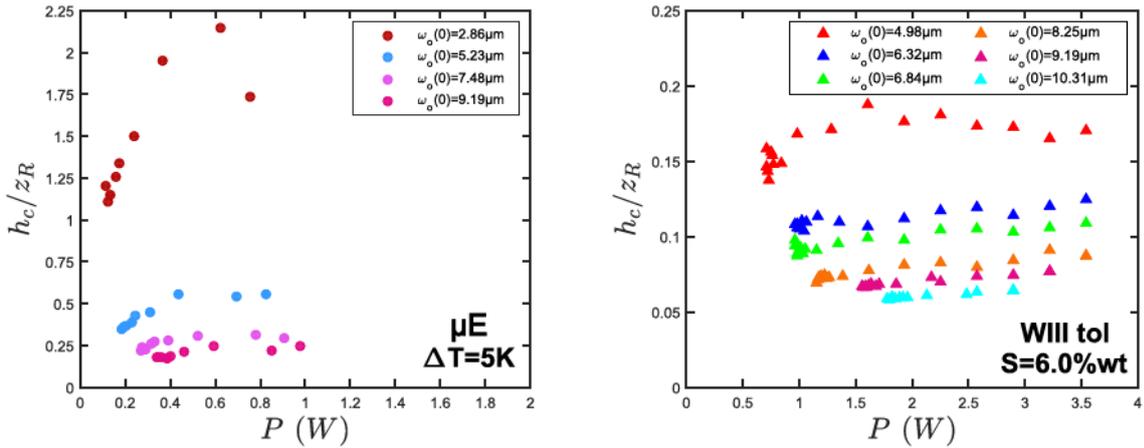


FIGURE 5.20 – Évolution de la hauteur du cône h_c normalisée par la longueur de Rayleigh z_R en fonction de la puissance pour deux systèmes fluides différents.

Nous voyons d'après la figure 5.20 que notre modèle simple pour la hauteur du cône permet de décrire relativement bien l'expérience, puisque le rapport h_c/z_R est en effet d'autant plus faible que la taille du faisceau ω_0 est grande.

De plus, nous remarquons que la hauteur du cône est généralement très petite comparée à la longueur de Rayleigh pour les systèmes présentés ici. Nous notons néanmoins qu'en considérant le *waist* ω_0 le plus petit pour les microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5 K$, le rapport h_c/z_R est supérieur à 1 (voir figure 5.20). Ce résultat provient de la méthode de détermination expérimentale de h_c qui surestime la hauteur du cône optique par rapport à la réalité puisque la pointe du cône (s'il était fermé) devrait se situer à l'endroit où existe le jet liquide (voir figure 5.5c). La hauteur h_c ainsi estimée est donc bien supérieure (environ deux fois ici) à la hauteur de la région conique de la déformation expérimentale.

En conclusion, la divergence du faisceau laser ne nécessite pas d'être prise en compte pour décrire nos expériences et le faisceau peut alors être considéré comme une onde plane dans la région conique des déformations d'interfaces obtenues expérimentalement.

5.5.2 Effet des réflexions secondaires sur le cône optique

Contribution à la pression de radiation optique

Nous avons montré lors de notre caractérisation expérimentale que le faisceau laser incident atteint l'interface liquide en condition de réflexion totale dans la région du cône optique (voir partie 5.2). Nous allons donc étudier dans cette partie la contribution des réflexions secondaires à la pression de radiation agissant sur l'interface, afin de savoir si celle-ci est sous-estimée dans le modèle théorique décrivant le demi-angle du cône liquide. Il faudrait alors prendre en compte cette contribution supplémentaire à $\Pi_{rad}(r)$ dans l'équation d'équilibre de l'interface, ce qui mènerait à une correction de l'expression analytique de θ_c .

La détermination exacte de la pression de radiation optique induite par les réflexions secondaires nécessite une étude numérique approfondie dans laquelle le champ électrique incident est calculé le long de l'interface liquide. Nous proposons dans cette section un modèle plus simple, basé sur une approche d'optique géométrique, qui nous permet d'évaluer la contribution respective de la lumière incidente et réfléchi à la pression de radiation induite en chaque point de l'interface. Dans cette approche, la déformation de l'interface liquide est assimilée à un cône fermé de demi-angle θ_c et de hauteur h_c (tel que son rayon est $R_c = h_c \tan \theta_c$) et le faisceau laser incident, considéré comme une onde plane de profil d'intensité gaussien $I(r) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2} e^{-2r^2/\omega_0^2}$, est décomposé en termes de rayons lumineux.

Considérons un rayon a d'incidence $\theta_{iA} = \pi/2 - \theta_c$ au point A de l'interface conique, défini par son rayon r_A et sa hauteur $h_A = h(r_A)$. La condition de réflexion totale étant toujours vérifiée dans les cônes optiques, ce rayon est donc réfléchi en un point B de l'interface, défini par r_B et $h_B = h(r_B)$, avec un angle d'incidence valant alors $\theta'_{iB} = \theta_{iA} - 2\theta_c$ soit $\theta'_{iB} = \pi/2 - 3\theta_c$ (voir figure 5.21).

Ajoutons que la vérification de la condition de réflexion totale pour le rayon incident impose $\theta'_{iB} > 0$. Cette condition nous mène alors à une conclusion importante quant à la valeur limite du demi-angle du cône optique puisque nous trouvons ainsi $\theta_c < \pi/6$, ce qui est vérifié dans nos expériences (pour les paramètres utilisés).

Afin de pouvoir déterminer la pression de radiation optique $\Pi'_{rad}{}^B$ induite au point B par le rayon réfléchi, il nous faut connaître le rayon r_B . Dans notre approche, la hauteur

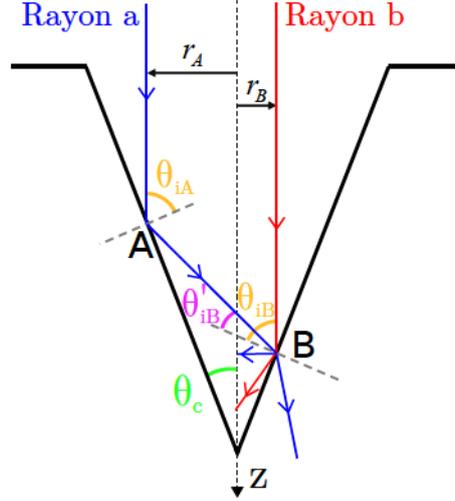


FIGURE 5.21 – Schéma de principe pour le calcul de la pression de radiation optique induite sur le cône optique par un rayon incident et réfléchi. L'interface liquide est assimilée à un cône fermé de demi-angle θ_c .

de déformation est reliée à son rayon par la relation :

$$h(r) = \frac{R_c - r}{\tan \theta_c} \quad (5.38)$$

D'après le schéma présenté en figure 5.21, nous pouvons déduire :

$$\begin{aligned} h_B &= h_A + (r_A + r_B) \tan(\theta_{iA} - \theta_c) \\ &= \frac{R_c - r_A}{\tan \theta_c} + (r_A + r_B) \tan\left(\frac{\pi}{2} - 2\theta_c\right) \end{aligned} \quad (5.39)$$

L'équation 5.38 étant valable en tout point de l'interface, nous obtenons alors :

$$h_B = \frac{R_c - r_B}{\tan \theta_c} = \frac{R_c - r_A}{\tan \theta_c} + (r_A + r_B) \tan\left(\frac{\pi}{2} - 2\theta_c\right) \quad (5.40)$$

Le rayon lumineux a incident au point A est alors réfléchi au point B dont la position radiale est donnée par :

$$r_B = r_A \frac{1 - \tan \theta_c / \tan 2\theta_c}{1 + \tan \theta_c / \tan 2\theta_c} \quad (5.41)$$

Dans la limite des petits angles ($\theta_c \ll 1$), nous obtenons alors $r_B \simeq \frac{1}{3}r_A$.

Nous pouvons maintenant calculer la contribution respective Π_{rad}^B du rayon b incident au point B et $\Pi_{rad}'^B$ du rayon a réfléchi totalement au point A à la pression de radiation optique totale agissant sur l'interface au point B . Rappelons que la pression de radiation optique s'exprime de façon générale par :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = n_2 \frac{I(r)\delta}{c} f(\theta_i, \theta_t) \quad (5.42)$$

avec

$$f(\theta_i, \theta_t) = \frac{\cos^2 \theta_i}{\delta} \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \quad (5.43)$$

Le rayon a étant totalement réfléchi au point A , son intensité laser au point B est alors $I'(r_B) = I(r_A)$ puisque $R(\theta_{iA}, \theta_{tA}) = 1$. La pression de radiation optique totale $\Pi_{rad}^{tot}(r_B) = \Pi_{rad}^B + \Pi_{rad}'^B$ au point B s'exprime donc :

$$\Pi_{rad}^{tot}(r_B) = n_2 \frac{\delta}{c} [I(r_B)f(\theta_{iB}, \theta_{tB}) + I(r_A)f(\theta'_{iB}, \theta'_{tB})] \quad (5.44)$$

soit

$$\Pi_{rad}^{tot}(r_B) = n_2 \frac{2P\delta}{\pi c \omega_0^2} \left[e^{-2\frac{r_B^2}{\omega_0^2}} f(\theta_{iB}, \theta_{tB}) + e^{-2\frac{r_A^2}{\omega_0^2}} f(\theta'_{iB}, \theta'_{tB}) \right] \quad (5.45)$$

Les profils radiaux de pression de radiation induite à la surface d'un cône optique par les rayons incidents et réfléchis sont représentés sur la figure 5.22, pour 3 systèmes fluides différents pour lesquels nous avons considéré des valeurs typiques de θ_c en se référant à la figure 5.7 et les indices de réfraction correspondants. De plus, nous fixons les paramètres du faisceau laser à $P = 2$ W et $\omega_0 = 6$ μm , qui sont des valeurs typiques de l'expérience.

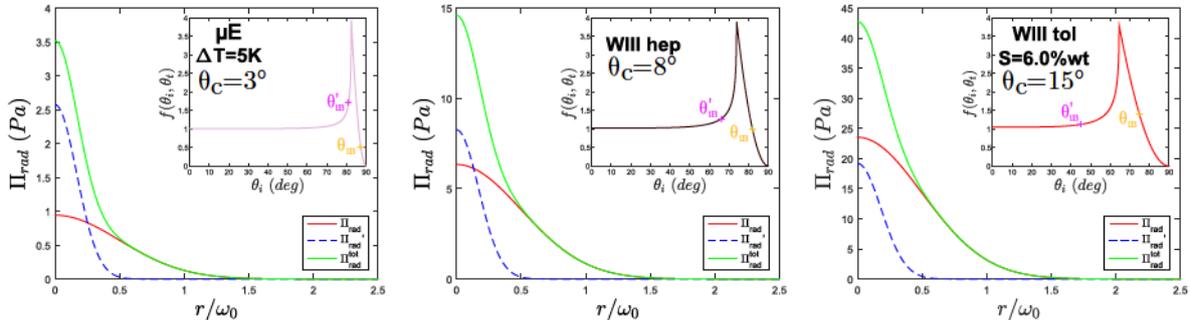


FIGURE 5.22 – Pression de radiation optique en fonction de la distance radiale normalisée r/ω_0 pour différents systèmes fluides. Π_{rad} correspond à la pression de radiation induite par le faisceau incident. Π'_{rad} correspond à la pression de radiation induite par les réflexions secondaires dans le cône. Le demi-angle du cône θ_c typique considéré pour chaque système est précisé sur les graphes. Les paramètres du faisceau laser incident sont $P = 2$ W et $\omega_0 = 6$ μm . Insert : Fonction $f(\theta_{iB}, \theta_{tB})$ intervenant dans l'expression de $\Pi_{rad}(r)$.

Comme nous pouvons le constater dans l'insert du graphe de gauche sur la figure 5.22, lorsque le demi-angle du cône θ_c est petit, la pression de radiation Π'_{rad} induite par les réflexions secondaires peut être plus élevée que celle induite par le faisceau incident, appelé Π_{rad} . En revanche, lorsque l'angle du cône augmente (ainsi que le contraste d'in-

dices optiques Δn), cette tendance s'inverse (voir insert du graphe de droite sur la figure 5.22 : la pression de radiation induite par le faisceau incident devient alors toujours plus élevée que celle induite par la lumière réfléchie. Ce résultat peut sembler contre-intuitif compte tenu des résultats que nous avons établis, qui nous conduisent à $\Pi_{rad}^B \propto e^{-2r_B^2/\omega_0^2}$ et $\Pi_{rad}^{\prime B} \propto e^{-18r_B^2/\omega_0^2}$. Cela laisse donc supposer que la pression de radiation induite par un rayon réfléchi devrait alors être toujours très faible par rapport à celle d'un rayon incident. La possibilité d'obtenir $\Pi_{rad}^{\prime B} > \Pi_{rad}^B$ peut s'expliquer en considérant la dépendance particulière de la pression de radiation avec l'angle d'incidence, qui est décrite par la fonction $f(\theta_i, \theta_t)$. En effet, les angles d'incidence θ_{iB} et θ'_{iB} des rayons incident et réfléchi sont d'autant plus petits que θ_c est grand. Pour des demi-angles de cônes suffisamment faibles, il apparaît alors que $f(\theta_{iB}) < f(\theta'_{iB})$, comme nous le montrons en insert sur la figure 5.22.

D'après les différents graphes présentés sur la figure 5.22, nous remarquons que les réflexions secondaires dans le cône optique ne contribuent pas à la pression de radiation totale pour $r/\omega_0 > 0.5$. Nous avons montré dans ce chapitre que les cônes optiques observés expérimentalement existent seulement pour $0.5 < r/\omega_0 < 1 - 1.2$. En effet, pour $r/\omega_0 < 0.5$, un jet est généralement observé.

Nous venons donc de vérifier que seule la pression de radiation de la lumière incidente est à prendre en compte sur la partie conique des déformations d'interfaces liquides.

En revanche, la contribution des réflexions secondaires à la pression de radiation optique totale devient non négligeable proche de l'axe, ce qui pourrait alors expliquer l'ouverture du cône optique à son extrémité, comme nous allons le voir dans la section suivante.

Ouverture du cône optique

Nous allons tenter d'apporter quelques éléments de réponse quant à l'ouverture des cônes optiques, que l'on peut caractériser par la formation d'un "cou" d'ouverture finie et égale à $2R_{cou}$, comme illustré sur la figure 5.23a. Dans une première approche, nous avons donc mesuré le rayon de ce cou en fonction de la puissance laser incidente, cela pour différentes tailles d'excitation ω_0 . Nous remarquons alors sur la figure 5.23b que le rayon de ce cou est d'autant plus important que P est élevée.

Il est alors facile d'envisager que cette ouverture est causée par une augmentation brutale de la pression de radiation qui apparaît à une distance à l'axe $r = R_{cou}$ bien définie, entraînant ainsi une nouvelle déstabilisation de l'interface liquide. En effet, comme nous l'avons montré dans notre modèle analytique (voir partie 5.3.1), le cône optique est fermé à son extrémité. Cela implique donc que le demi-angle local de la déformation augmente très proche de l'axe (i.e. à la pointe du cône). Ainsi l'angle d'incidence du faisceau diminue à l'extrémité du cône optique, variant donc de $\theta_i = 90^\circ - \theta_c$ jusqu'à atteindre $\theta_i = 0$

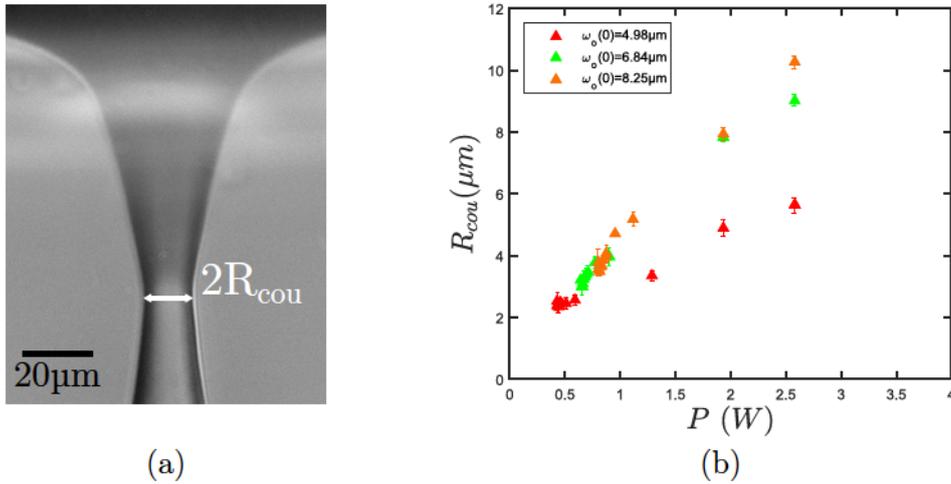


FIGURE 5.23 – (a) *Illustration expérimentale du cou d'un cône optique. Les paramètres du faisceau incident sont $P = 1.93W$ et $\omega_0 = 10.56\mu\text{m}$.* (b) *Évolution du rayon du cou en fonction de la puissance incidente dans des phases de Winsor au toluène ($S=6.5\%wt$).*

sur l'axe, en passant donc par l'angle de réflexion totale θ_{RT} où la pression de radiation optique subit une amplification.

Cependant l'évolution expérimentale du rayon du cou avec la puissance présentée en figure 5.23b semble alors incompatible avec les profils analytiques ou numériques (voir 5.15), pour lesquels l'extrémité de la déformation devient de plus en plus étroite en augmentant la puissance. Cela semble donc suggérer un effet important des réflexions secondaires dans l'ouverture des cônes optiques, celles-ci n'étant pas prises en compte dans l'expression de la pression de radiation optique utilisée dans les approches analytique et numérique.

À l'aide du modèle minimaliste de cône "parfait" présenté précédemment pour le calcul de la pression de radiation optique totale, nous proposons donc d'estimer le rayon du cou. Pour cela, nous supposons que celui-ci correspond à la distance $r = R^*$ à partir de laquelle la pression de radiation totale devient supérieure à la valeur seuil nécessaire pour déstabiliser l'interface liquide (voir figure 5.24), ce qui apparaît pour $\Pi_{\text{rad}} \simeq 4.43\gamma/\omega_0$ d'après les résultats établis au chapitre 4. Nous supposons donc ici que la déstabilisation de l'interface conique peut être décrite de la même manière que précédemment, ce qui n'est probablement pas le cas.

En calculant les profils radiaux de pression de radiation optique totale pour les paramètres expérimentaux ($\theta_c, P, \omega_0, \gamma\dots$), nous pouvons alors comparer les valeurs R^* ainsi estimées aux valeurs expérimentales R_{cou} présentées sur la figure 5.23b. Nous remarquons alors sur la figure 5.24 que cette approche très simple conduit à un bon accord et permet ainsi de rendre compte de la tendance expérimentale du rayon du cou avec la puissance laser.

Ce modèle ne constitue qu'une vision très simplifiée de la réalité mais permet néan-

moins d'avancer une hypothèse sur le rôle des réflexions secondaires quant à l'ouverture des cônes optiques.

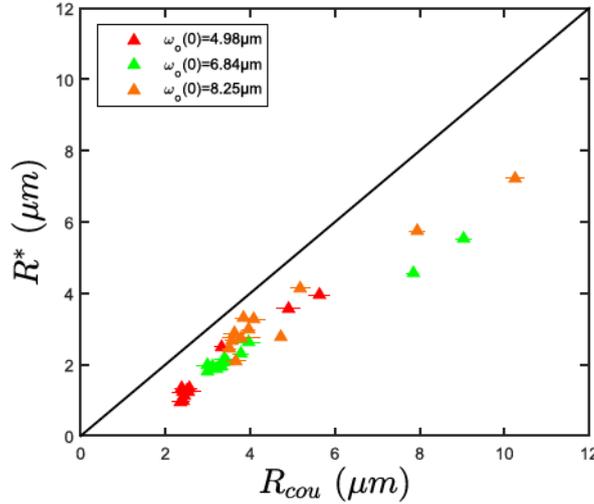


FIGURE 5.24 – Comparaison des valeurs expérimentales R_{cou} et estimées R^* de l'ouverture du cône optique.

Au-delà du cône optique

Nous allons maintenant nous intéresser à la déformation tout à fait particulière de l'interface liquide qui apparaît au-delà du cône optique, c'est-à-dire après l'ouverture du cou. En effet, nous observons une structure liquide en forme de losange de révolution dont la morphologie semble directement liée à celle du cône.

Afin de vérifier cette première observation, nous avons donc déterminé l'angle de la déformation locale en tout point de l'interface en détectant son profil complet (voir figure 5.25a). Comme nous le constatons sur la figure 5.25b, l'angle du losange sur sa partie supérieure (région 2) ou inférieure (région 3), correspond effectivement à celui du cône optique (région 1). Le losange liquide constitue alors la structure "miroir" du cône optique en terme d'angle, mais il possède une longueur différente.

Les dimensions de ce losange liquide peuvent s'expliquer de manière assez simple grâce à des considérations d'optique géométrique. Les rayons incidents étant réfléchis totalement dans le cône optique, ils génèrent alors un faisceau de rayons lumineux parallèles entre eux et de même intensité, dont certains rayons passent donc par l'ouverture du cône, large de $2R_{cou}$. Ainsi le rayon incident en $r = R_{cou}$ est le rayon le plus proche de l'axe à être réfléchi totalement dans le cône (rayon vert sur la figure 5.26a), ce qui fixe alors la longueur du losange, comme nous le montrons sur la figure 5.26a. Les rayons peuvent alors être totalement réfléchis dans la structure liquide et conduire alors à une cascade

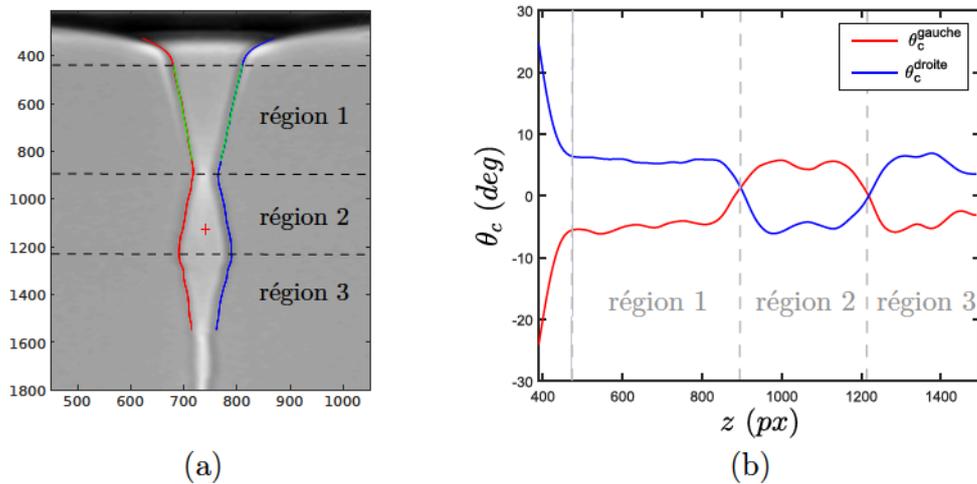


FIGURE 5.25 – (a) Détection du profil de l'interface dans des phases de microémulsions à $\Delta T = 35$ K. Les paramètres du faisceau laser sont $P = 2.90$ W et $\omega_0 = 7.25\mu\text{m}$. (b) Angle local de la déformation en fonction de la distance z par rapport à la position de l'interface non déformée.

de losanges liquides (voir figure 5.26b). L'émergence d'une multitude de losanges liquides est d'autant plus simple à observer que le demi-angle du cône est petit. Il en résulte des angles d'incidence du faisceau sur l'interface liquide plus élevés ce qui favorise la réflexion totale.

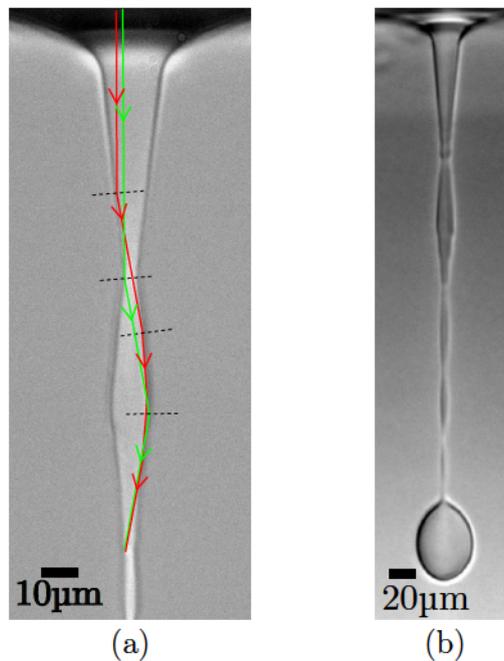


FIGURE 5.26 – (a) Trajet des rayons réfléchis totalement dans un cône optique. (b) Cascade de losanges liquides obtenue dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 20$ K pour $P = 0.97$ W et $\omega_0 = 3.57\mu\text{m}$.

La formation de telles structures liquides est encore en cours d'étude actuellement.

5.5.3 Influence de la force diffusive

Au chapitre 4, nous avons déjà discuté de l'effet potentiel de la diffusion du faisceau laser, en présence de turbidité dans les phases liquides, sur la déformation linéaire et la déstabilisation d'une interface liquide par laser, notamment pour expliquer certains désaccords entre nos différentes méthodes de détermination de très basses tensions interfaciales. En exploitant nos mesures de tensions pour nos phases micellaires de micromémulsions, qui sont des systèmes diffusants, nous avons finalement conclu que les effets diffusifs étaient assez limités (pour les puissances considérées). Les puissances laser nécessaires à l'observation expérimentale des cônes optiques étant assez élevées ($P > P_S$), nous pouvons alors supposer que la force diffusive, dont l'amplitude est proportionnelle à l'intensité laser I [113], peut donc avoir une conséquence sur la morphologie conique.

Rappelons que la diffusion du faisceau laser sur les inhomogénéités présentes dans les phases liquides entraîne l'établissement d'écoulements permanents dans le volume, orientés dans le sens de propagation du faisceau laser. Par conservation de la masse, l'écoulement engendré prend la forme d'une recirculation toroïdale centrée sur l'axe du faisceau et dont la taille est définie par la cellule contenant notre échantillon. Ainsi proche de l'axe du faisceau, il est facile d'imaginer que ces écoulements peuvent influencer la déformation de l'interface liquide et induire une variation de l'angle du cône, comme illustré schématiquement sur la figure 5.27.

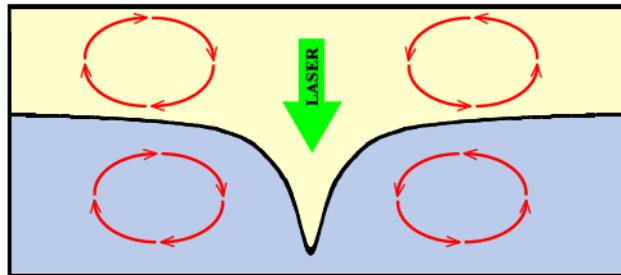


FIGURE 5.27 – Représentation schématique des écoulements induits par effets diffusifs (en rouge) autour d'un cône optique.

Cette hypothèse permettrait peut-être d'expliquer pourquoi les demi-angles observés expérimentalement pour les microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5$ K sont en bon accord avec le modèle théorique (voir figure 5.13), malgré la présence des effets de gravité non négligeables proche du point critique. En effet, nous devrions alors observer des demi-angles de cône supérieurs à la prédiction théorique (puisque le nombre de Bond Bo est élevé) pour ce système particulier, ce qui n'est pas le cas. L'accord obtenu pour les

microémulsions à $\Delta T = 5\text{K}$ résulterait alors d'une compétition entre les effets de gravité, qui tendent à augmenter θ_c , et les effets de la force diffusive, qui tendent à diminuer θ_c . La turbidité des phases micellaires devenant plus faible en augmentant l'écart à la température critique, nous pouvons donc nous attendre à ce que l'effet de la force diffusive soit moins important aux grands ΔT . La tension interfaciale variant également avec ΔT , il en est donc de même pour l'effet relatif de la gravité (caractérisée par le nombre de Bond Bo). Il est donc difficile de conclure quant à l'influence réelle de la force diffusive sur la morphologie conique, simplement en observant l'accord entre les valeurs expérimentales θ_c et théoriques θ_c^{th} avec l'écart à la température critique.

Une investigation numérique plus approfondie prenant en compte à la fois les effets de gravité (ce qui est déjà fait) et les effets diffusifs serait donc nécessaire. Il faudrait alors ajouter un terme dans l'équation d'équilibre de l'interface afin de considérer les contraintes visqueuses induites sur l'interface par les écoulements en volume, comme l'a proposé Schroll *et al.* [113].

La question de l'effet de la force diffusive sur les morphologies coniques reste donc assez ouverte pour le moment.

5.6 Effets liées aux cônes optiques

Jusqu'à présent, nous avons décrit le cône optique comme la déformation singulière d'une interface liquide soumise à la pression de radiation optique. Dans cette partie, nous allons montrer que cette déformation vers une morphologie conique peut être à l'origine d'applications potentielles en présentant quelques effets liés aux cônes optiques.

Génération de gouttes monodisperses

Nous avons discuté dans la partie précédente de l'influence de la diffusion du faisceau laser dans les phases liquides. Outre son effet sur le cône optique lui-même, la force diffusive reste néanmoins un phénomène qui permet de générer de façon simple, via la pression de radiation optique, des jets liquides caractérisés par l'émission régulière de gouttelettes. La génération de gouttes par une structure cône-jet (optique) est tout à fait semblable au phénomène d'*electro-spraying* observé sous champs électriques intenses et utilisé de nos jours dans de nombreux domaines (injection de carburant, spectrométrie de masse, impression à jet d'encre, fabrication de fibres synthétiques...).

Dans une approche exploratoire, nous avons voulu savoir s'il existe une corrélation entre la taille des gouttes et les caractéristiques du cône optique. Pour cela, nous avons mesuré le rayon moyen des gouttes émises par ces jets liquides, en fonction de la puissance laser et cela pour différentes tailles de faisceau. Nous présentons sur la figure 5.28 l'évolution

du rayon moyen des gouttes R_{goutte} en fonction du rayon du cou R_{cou} , ce dernier étant une caractéristique du cône variant avec P et ω_0 comme nous l'avons montré précédemment (voir figure 5.23b).

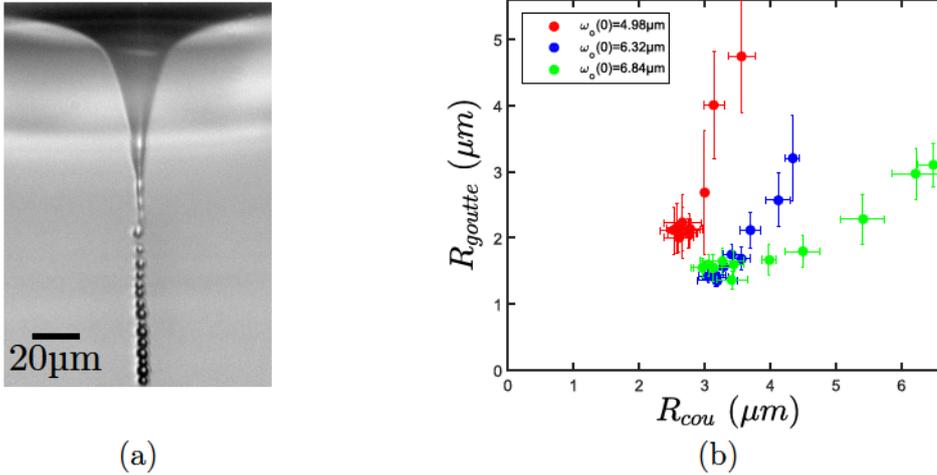


FIGURE 5.28 – (a) Production de gouttes monodisperses dans des phases de Winsor au toluène ($S=6.0\%$ wt). Les paramètres du faisceau laser incident sont $P = 1.06$ W et $\omega_0 = 8.75$ μm . (b) Évolution du rayon moyen des gouttes émises en fonction du rayon du cou du cône optique dans des phases de Winsor au toluène ($S=6.0\%$ wt).

Nous nous apercevons donc que la taille des gouttes émises semble dépendre de la taille du cou du cône, ces deux tailles caractéristiques augmentant simultanément. De plus, il semble exister encore une fois une hiérarchie avec la taille de l'excitation ω_0 , le rayon des gouttes étant d'autant plus grand que le *waist* est petit.

Ces premiers résultats suggèrent donc que la taille des gouttes est liée à la morphologie conique, et ouvrent ainsi la voie vers l'*opto-spraying*, où il serait alors possible de contrôler la taille des gouttes émises à partir d'une structuration du cône optique.

Mise en forme de faisceau et piégeage latéral

Comme nous l'avons vu précédemment, lorsque le faisceau incident intercepte l'interface liquide d'un cône optique, il subit alors une réflexion totale à l'intérieur de ce dernier. Ces réflexions secondaires sont ensuite réfractées au second impact avec l'interface et donc en partie transmises vers le liquide extérieur au cône (d'indice de réfraction n_1 plus faible). Le cône optique se comporte alors comme une lentille conique formant un anneau de lumière centré sur l'axe de la déformation et dont le profil d'intensité est gaussien, comme nous le montrons schématiquement sur la figure 5.29a. Il est intéressant de remarquer ici que le profil d'intensité de cet anneau est semblable au profil du faisceau incident dans le

sens où les rayons les plus intenses sont les plus proches de l'axe de la déformation. Cette mise en forme du faisceau laser par la structure conique de l'interface liquide est assez semblable à ce qui peut être obtenu à l'aide d'un axicon. Cet élément optique, qui est une lentille cylindrique dont le demi-angle est très élevé, est généralement utilisé afin de générer un profil de faisceau en forme d'anneau à partir d'un faisceau incident gaussien. La différence avec le cône optique réside dans la nature du profil d'intensité du faisceau structuré, qui est une fonction de Bessel au foyer d'un axicon. Les zones de plus fortes intensités lumineuses se situent alors sur l'axe de cette lentille conique si l'on se place au foyer (voir figure 5.29b). Au-delà du foyer de l'axicon, nous obtenons alors un anneau lumineux pour lequel les rayons les plus intenses sont les plus éloignés de l'axe de la déformation (contrairement à un cône optique).

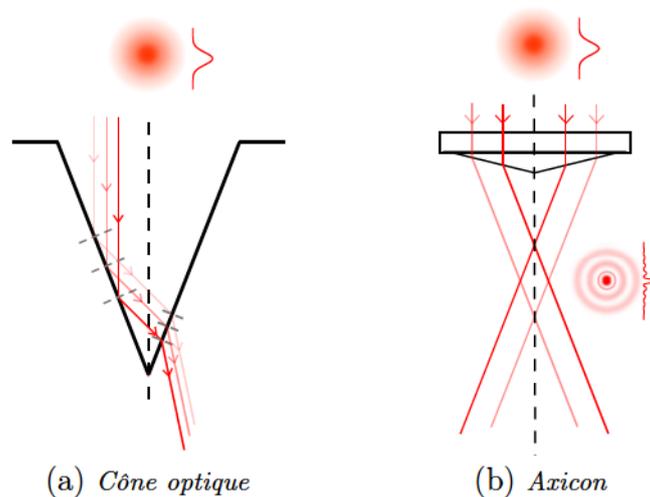


FIGURE 5.29 – Mise en forme d'un faisceau incident gaussien par différentes structures.

La mise en forme du faisceau incident en un anneau lumineux à partir du cône optique rend alors possible le piégeage latéral (i.e. hors axe) de gouttes de la phase la plus réfringente dans la phase la moins réfringente. En effet en générant une déformation de forte amplitude, comme un cône optique, certaines gouttes de la phase supérieure peuvent être émises aux premiers instants de la déstabilisation de l'interface. Sous l'action de la pression de radiation du faisceau laser, ces gouttes sont alors poussées vers le fond de la cellule, puis remontent ensuite sous l'effet de la gravité lorsque le cône est formé (la lumière incidente étant majoritairement structurée pour former l'anneau). Lorsqu'une goutte arrive à proximité de la pointe du cône liquide, elle est alors attirée vers l'anneau lumineux sous l'effet des forces optiques (ici la force de gradient) et se retrouve alors piégée optiquement de manière stable, comme nous le montrons sur la séquence d'images expérimentales de la figure 5.30.

Les gouttes formées à partir de tels systèmes fluides étant également de très basses

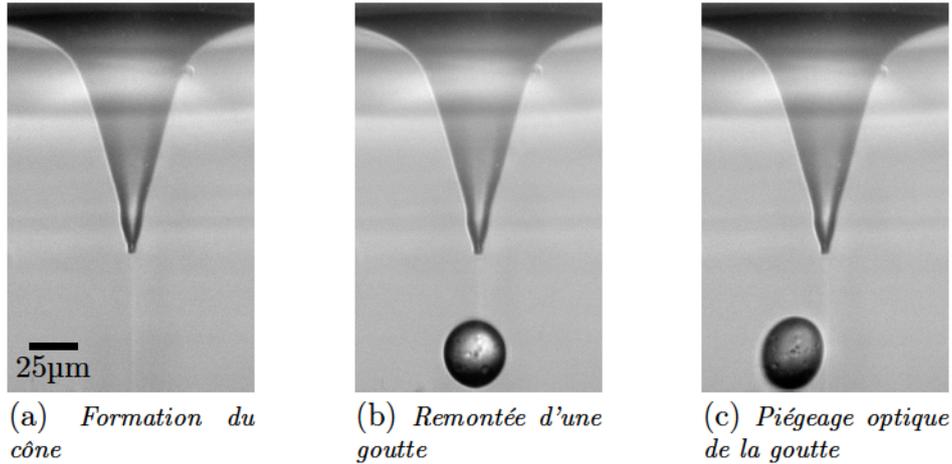


FIGURE 5.30 – Piégeage latéral d'une goutte de la phase supérieure à partir d'un cône optique dans des phases de Winsor au toluène ($S=6.0\%$ wt). Les paramètres du faisceau laser incident sont $P = 2.25\text{ W}$ et $\omega_0 = 13.33\ \mu\text{m}$.

tensions interfaciales, nous induisons en plus du piégeage optique une déformation de celles-ci, passant d'une forme initialement sphérique (voir figure 5.30b) vers une forme allongée suivant l'axe du faisceau constituant l'anneau (voir figure 5.30c). La déformation d'objets sphériques par laser fera d'ailleurs l'objet des chapitres suivants.

Tout comme un axicon, nous pouvons supposer que le diamètre de l'anneau lumineux ainsi obtenu dépend de l'angle du cône optique. Ce dernier étant ajustable via les paramètres du faisceau laser incident (P et ω_0), nous pouvons alors imaginer contrôler le piégeage latéral via la morphologie conique, ce qui pourrait servir à la structuration du dépôt de particules, initialement piégées sur cet anneau, par exemple.

Multi-filamentation liquide

Nous terminons enfin par un effet tout à fait surprenant qui apparaît à la pointe du cône optique dans certaines conditions expérimentales.

Nous avons montré jusqu'à présent qu'au dessus d'un certain seuil en puissance, l'interface liquide se déstabilise vers une forme conique le plus souvent accompagné d'un jet, ou d'une aiguille liquide dans le cas d'un système transparent (ici les phases de Winsor à l'heptane). Il apparaît, de façon spécifique à ce système transparent, un phénomène de multi-filamentation liquide pour lequel nous observons alors la formation d'une multitude d'aiguilles prenant naissance à la pointe du cône optique (voir figure 5.31).

En plaçant un filtre coloré de faible densité optique devant la caméra, nous pouvons observer la propagation du faisceau incident à l'intérieur de cette structure liquide particulière et nous remarquons alors que chaque aiguille liquide se comporte comme un

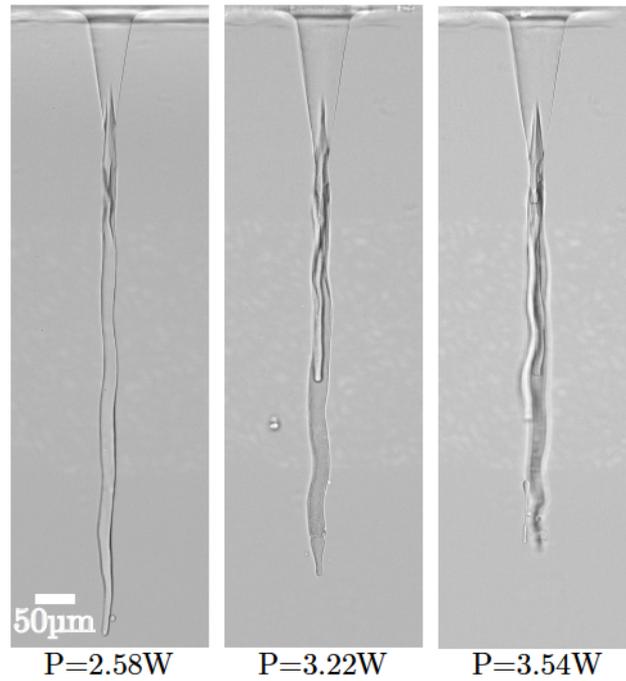


FIGURE 5.31 – Multi-filamentation liquide obtenue dans des phases de Winsor à l’heptane pour différentes puissances laser et $\omega_0(0) = 6.32\mu\text{m}$.

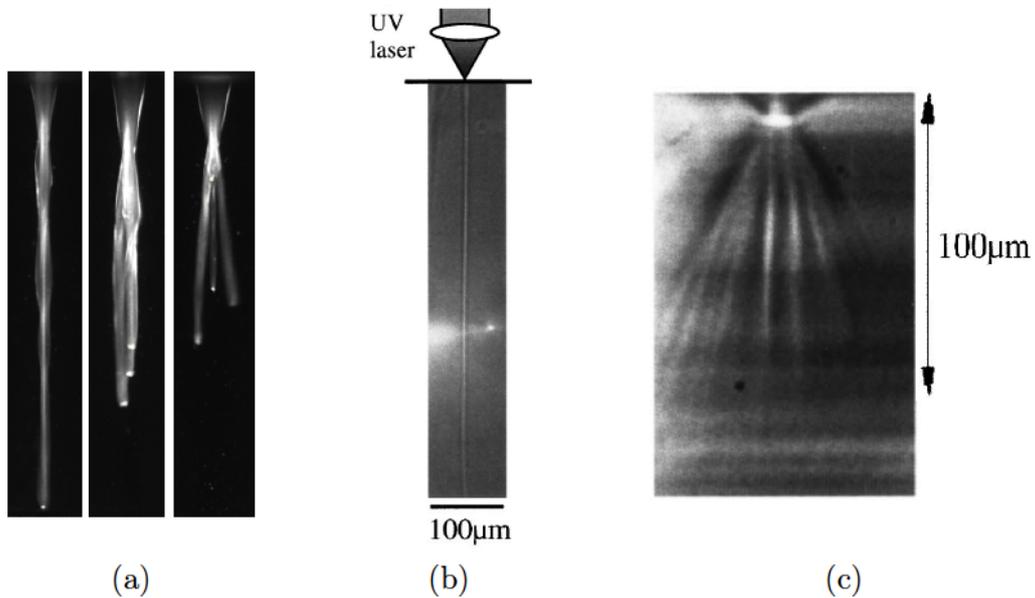


FIGURE 5.32 – (a) Guidage optique dans des multi-filaments liquides. (b) Fibre optique auto-induite par photopolymérisation dans une résine. La puissance du faisceau laser incident est $P = 0.15\text{ mW}$, l’ouverture numérique de la lentille de focalisation est $N.A. = 0.23$. (c) Multi-fibres auto-induites. La puissance du faisceau laser incident est $P = 0.66\text{ mW}$, l’ouverture numérique de la lentille de focalisation est $N.A. = 1.0$. Issues de [114].

guide d'ondes pour le faisceau incident (voir figure 5.32a). Cette observation expérimentale conduit donc à envisager la possibilité de former, par pression de radiation optique, des guides d'ondes liquides auto-adaptés analogues à ceux créés par photopolymérisation. Ces derniers, découverts il y a quelques années par Kewitsch and Yariv [115], ont suscités par la suite de nombreuses recherches tant pour leur aspect fondamental qu'appliqué [114, 116, 117]. Ce phénomène de croissance de fibres induites optiquement apparaît lorsqu'un faisceau laser incident est focalisé dans une résine photopolymérisable. Un processus de solidification par assemblage de radicaux (et donc de polymérisation) est alors engendré au niveau du point de focalisation du faisceau. Cela entraîne une augmentation de l'indice de réfraction local de la résine en ce point causant ainsi une progression du phénomène de polymérisation dans la direction de propagation du faisceau par auto-focalisation. Le faisceau incident se retrouve alors confiné dans ce filament qui se comporte comme un guide d'onde de quelques micromètres de diamètre (voir figure 5.32b). L'avantage principal d'un tel guide d'onde réside dans le fait qu'il est auto-induit et donc parfaitement adapté au faisceau incident, ce qui permet notamment de créer de très bons coupleurs de fibres [118]. En revanche, la création de ces structures est irréversible, contrairement aux filaments liquides obtenues par pression de radiation, qui n'existent plus en absence de faisceau laser.

Il a été observé, avec ce type de guides d'ondes [114], que des structures de multifilaments pouvaient également être induites suivant l'ouverture numérique de la lentille utilisée pour focaliser le faisceau laser dans la résine et la puissance de ce dernier (voir figure 5.32c). Dans une approche analogue, nous avons donc varié la puissance du faisceau laser incident sur l'interface liquide pour différentes tailles d'excitation ω_0 . Nous présentons sur la figure 5.33 le nombre de filaments liquides induits en fonction de la puissance laser et de ω_0 . Nous observons alors, pour chaque taille de faisceau, que la formation de ces filaments obéit à des seuils en puissance. De façon assez intuitive, le nombre de filaments est d'autant plus grand que la puissance laser incidente est élevée. En revanche, nous remarquons que la multiplication de ces doigts est d'autant plus aisée que la taille de l'excitation ω_0 est grande, ce qui est contre-intuitif compte tenu de l'évolution linéaire du seuil d'instabilité de l'interface avec ω_0 que nous avons démontré au chapitre 4. Nous avons confirmé dans cette étude les premières observations de cet effet "calamar", obtenues par J. Petit au cours de ses travaux de thèse [70].

Les phases de Winsor à l'heptane dans lesquelles nous observons cet effet particulier possèdent un contraste d'indices optiques relativement important ($\Delta n = 0.055$), pour lequel il existe un fort couplage entre propagation et déformation. Cependant, la multifilamentation liquide n'a jamais été observée dans nos phases de Winsor au toluène, malgré un contraste d'indices optiques plus élevé ($\Delta n \sim 0.14$). Ces phases étaient en revanche assez diffusantes, tout comme les microémulsions quasi-critiques, ce qui tend à faire pen-

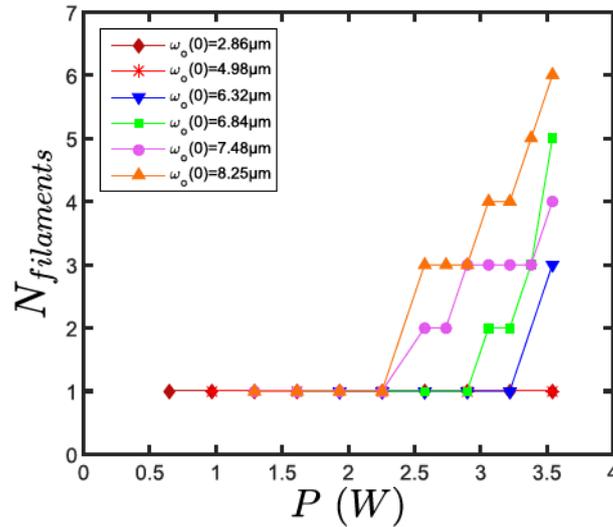


FIGURE 5.33 – Évolution du nombre de filaments liquides générés en fonction de la puissance laser incidente, pour différentes tailles de faisceau.

ser que les multi-filaments ne peuvent être induits en présence d'effets diffusifs.

Ajoutons que cette nouvelle manifestation optique est observée de manière similaire sous champs intenses, ce qui suggère une fois de plus une forte analogie entre électro- et opto-hydrodynamique.

5.7 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons étudié les déformations d'interfaces liquides induites par pression de radiation optique, au-delà du seuil d'instabilité. Nous avons montré que l'interface adopte alors une forme singulière sous forte excitation laser, qui se traduit par l'émergence d'un cône liquide, le plus souvent accompagné d'un jet.

Nous avons caractérisé expérimentalement la morphologie de ces cônes optiques, et plus particulièrement le demi-angle θ_c , et nous avons mis en évidence une dépendance de celui-ci avec les paramètres de l'excitation mais également des fluides utilisés. Ces observations ont ensuite été confirmées par une étude analytique et numérique, en très bon accord avec l'expérience, confirmant ainsi le rôle clé de la réflexion totale dans la génération de telles structures et l'influence de la gravité sur la morphologie de celles-ci.

L'étude réalisée ici sur les cônes optiques constitue donc une base très solide sur ce sujet, dont les perspectives sont multiples. L'influence de la force diffusive sur la morphologie conique est toujours à confirmer et nécessiterait alors une investigation supplémentaire comme nous l'avons mentionné précédemment. De plus, l'effet des réflexions secondaires comme cause possible de l'ouverture du cône optique vers un jet et la formation de lo-

sanges liquides sont à approfondir. Une modélisation numérique plus raffinée que le modèle très simple proposé dans la partie 5.5.2, comme une méthode de BEM calculant le champ électrique local à l'interface, est à envisager afin de mieux comprendre ces phénomènes. Nous nous sommes intéressés dans ce chapitre au régime statique des cônes optiques, pour lequel la déformation de l'interface est stationnaire. Il serait alors très intéressant de réaliser une étude dynamique, ce qui permettrait de mieux comprendre la formation de telles structures liquides. En mesurant le demi-angle θ_c du cône optique au cours de sa formation, nous pourrions alors de plus vérifier si la croissance du cône optique se fait de façon auto-similaire (les dimensions augmentant avec une ouverture θ_c constante). Une étude numérique préliminaire de BEM a été réalisée dans notre équipe par H. Chraïbi afin d'étudier cette dynamique de formation. Nous présentons sur la figure 5.34 la comparaison des dynamiques expérimentale et numérique de déformation sous forte excitation dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5$ K. Nous remarquons la similitude des déformations obtenues mais également que cette modélisation numérique prédit une ouverture du cône optique.

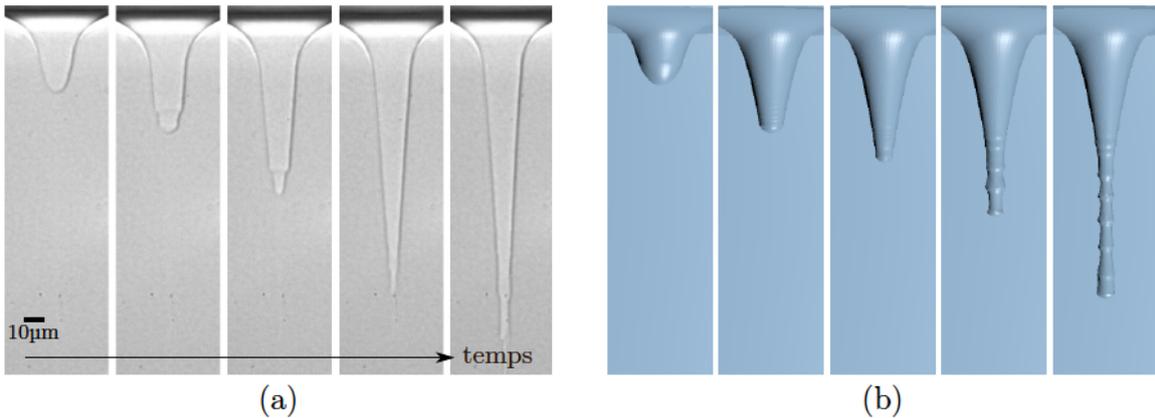


FIGURE 5.34 – *Dynamique de formation (a) expérimentale et (b) numérique d'un cône optique dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5$ K. Les paramètres du faisceau laser incident sont $P = 0.99$ W et $\omega_0 = 11.54$ μm . L'intervalle de temps entre chaque image est $\Delta t = 0.2$ s.*

Nous sommes revenus tout au long de ce chapitre sur l'analogie qui existe entre opto- et électro-hydrodynamique, pour laquelle une interface entre deux fluides adopte également une forme conique sous l'effet d'un champ électrique très intense. Cependant, l'émergence d'un cône liquide n'est pas un phénomène propre à ces deux régimes particuliers mais peut être observée dans de nombreuses situations. En effet, depuis les travaux pionniers de Zeleny sur les jets électrifés [24], ce phénomène a par exemple été étendu aux liquides magnétiques [101, 119, 120, 121]. De plus, la déformation d'une interface liquide vers une morphologie conique se retrouve dans de nombreux problèmes de dynamique des fluides, où différents forçages entrent en concurrence avec les contraintes capillaires : gouttelettes

glissantes sur des substrats solides [122, 123, 124], rupture visqueuse de gouttes pendantes [80], structuration du film de mouillage d'un liquide visqueux sur une plaque verticale mobile [125, 126, 127], jet inertiel induit par l'effondrement d'ondes stationnaires à la surface d'un fluide [128] ou encore pointe conique induite sur une goutte d'eau immergée dans l'huile par effet Marangoni solutal [129, 130, 131].

La formation de pointe conique s'observe également lors du refroidissement brutal de gouttes d'eau [132, 133] ou sur des films minces de silicium éclairés par des lasers excimères pulsés [134].

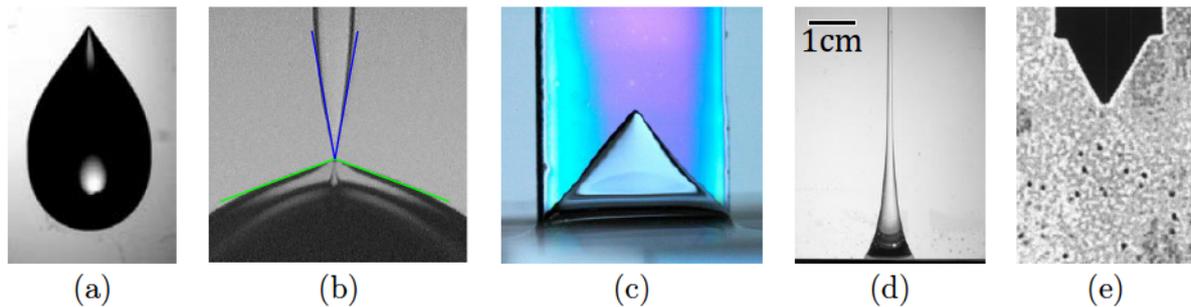


FIGURE 5.35 – (a) Gouttelette millimétrique d'huile silicone glissant sur un substrat solide incliné. (b) Rupture visqueuse d'une goutte pendante d'huile silicone dans de l'huile minérale. (c) Structuration d'un film de Landau-Levich au tirage d'une plaque hors d'un bain liquide. (d) Jet inertiel obtenu par effondrement d'ondes à la surface d'un bain de solution eau-glycérol. (e) Déformation conique d'une goutte pendante d'eau immergée dans l'huile sous l'action d'un effet Marangoni solutal.

Ces diverses situations soulèvent alors la question importante de l'émergence de la forme conique comme morphologie universelle lorsqu'une interface liquide est soumise à une contrainte. Le développement d'un tel cadre universel, initié par Taylor en considérant la compétition entre les contraintes capillaires et électriques d'une part, et avec la contraintes de cisaillement mécanique d'autre part [29], est donc toujours d'actualité.

Chapitre 6

Développement d'un double piège optique fibré

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, il est possible de générer des gouttelettes micrométriques via les déformations d'interfaces liquides induites par pression de radiation. Nos systèmes fluides étant de très basse tension interfaciale, les gouttes obtenues sont alors très molles et peuvent ainsi être piégées et déformées optiquement, comme nous l'avons montré au chapitre précédent avec la formation d'un axicon liquide. Il est également possible d'utiliser la déformation linéaire d'une interface liquide molle (voir chapitre 4), qui se comporte alors comme une lentille liquide modifiant la propagation du faisceau incident [135], afin de piéger et déformer les gouttes ainsi produites (voir figure 6.1).

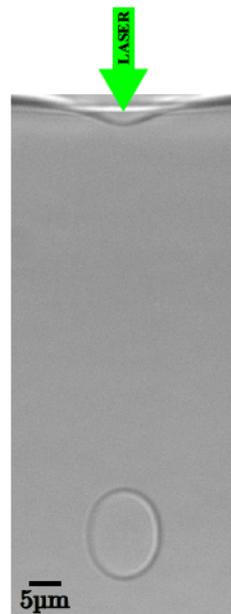


FIGURE 6.1 – Étirement d'une goutte piégée par un faisceau laser incident focalisé par l'interface déformée dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 8K$.

L'équilibre de la goutte résulte dans ce cas d'une compétition entre la force optique qui pousse la goutte dans la direction de propagation du faisceau laser (appelée force de *scattering*) et la gravité qui la fait remonter. De plus, la pression de radiation optique déforme les faces incidente et transmise et étire la goutte le long de l'axe du faisceau. Cela implique que la déformation de la goutte est asymétrique lorsqu'elle est déformée par un seul faisceau, comme nous pouvons le voir sur l'image expérimentale présentée ci-dessus, car la déformation face incidente crée un effet de lentille qui modifie l'intensité de la pression de radiation sur la face transmise. De plus, la force optique de gradient agissant ici de telle manière à attirer les gouttes vers les régions de forte intensité (i.e. sur l'axe du faisceau), nous piégeons généralement plusieurs gouttes le long de l'axe du faisceau, chacune modifiant la propagation de ce dernier et par conséquent la déformation induite sur les gouttes suivantes.

Afin d'éviter cette difficulté, nous avons donc construit et calibré un double piège optique qui permet à la fois de piéger et déformer symétriquement un objet unique. Notre but est alors d'atteindre des régimes non-linéaires de déformation, ce qui nécessite de mettre en place un double piège optique travaillant à une longueur d'onde adaptée (pour éviter tout chauffage) tout en acceptant des fortes puissances laser.

Dans une première partie, nous présenterons donc le montage expérimental de ce double piège, qui allie à la fois optique et microfluidique. Nous décrirons ensuite les forces optiques qui agissent sur un objet dans un tel dispositif ce qui nous permettra de présenter la méthode de calibration de notre piège.

6.1 Montage expérimental

Contrairement aux pinces optiques, utilisant un seul faisceau laser focalisé, ce double piège optique est composé de deux faisceaux divergents contra-propageant et de même axe optique, issus de fibres optiques comme illustré schématiquement sur la figure 6.2.

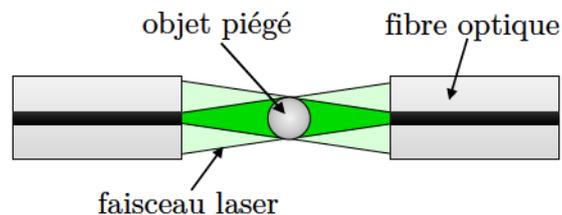


FIGURE 6.2 – Schéma de principe d'un double piège optique fibré.

De par ses nombreuses applications à l'étude des objets biologiques, ce double piège initialement développé par Guck *et al.* [52] et connu sous le terme *optical stretcher*, a suscité beaucoup d'intérêt ce qui a conduit au développement de différentes "versions"

plus ou moins sophistiquées de ce dispositif. Par exemple, les premières versions étaient constituées de deux fibres optiques alignées le long d'un support et immergées dans une suspension de particules [52], alors que les versions les plus récentes emploient la gravure par laser femtoseconde sur des puces microfluidiques en verre afin de réaliser des guides pour aligner les fibres optiques de manière très précise [136].

L'*optical stretcher* est donc constitué d'un dispositif optique et microfluidique, afin de faire écouler les objets jusqu'à la région du piège. Nous allons donc maintenant décrire les dispositifs utilisés dans notre étude.

6.1.1 Dispositif optique

Jusqu'à maintenant, toutes les études utilisant ce double piège optique ont été réalisées avec des rayonnements situés dans l'infra-rouge ($\lambda_0 > 800\text{nm}$), pour lesquels le développement des télécommunications a permis d'aboutir à des sources fibrées, dont le couplage ne varie donc pas ou très peu dans le temps. Cependant ces sources laser délivrent des faisceaux de puissance laser assez faibles ($P_{tot}^{max} \sim 1\text{W}$ et $\sim 1.5\text{W}$ pour des longueurs d'onde respectives $\lambda_0 = 808\text{ nm}$ et 1064 nm). Le but étant de développer ici un double piège optique de forte puissance tout en évitant le chauffage, cela nécessite donc le développement d'un montage optique spécifique, comme nous allons le voir, et pour lequel il n'existe pas de sources fibrées.

Trajet optique du faisceau laser

Le dispositif optique du double piège, mis en place durant cette thèse, est présenté sur la photographie en figure 6.3. Ce dispositif est composé de différents éléments qui permettent de coupler un faisceau laser continu, de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532\text{ nm}$, de forte puissance ($P_{max} = 5\text{ W}$) dans des fibres optiques monomodes. Le faisceau laser est issu d'un laser $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ continu doublé en fréquence (AzurLight Systems) qui présente un mode gaussien de type TEM_{00} avec un facteur $M^2 < 1.1$ et une très grande précision de pointé afin de limiter les pertes de couplage dans les fibres optiques.

Le faisceau laser traverse tout d'abord une lame demi-onde qui permet de tourner la polarisation de l'onde, initialement linéaire verticale en sortie de laser, avant d'atteindre un cube séparateur (CS). En ajustant la position des lignes neutres de cette lame par rapport à la polarisation de l'onde incidente, nous pouvons ainsi privilégier l'une ou l'autre des voies du montage en fonction de la polarisation et donc répartir la puissance laser à volonté dans les fibres optiques ($OF_{1,2}$). Comme nous le voyons sur la figure 6.3, chacune des deux voies situées après le cube séparateur est composée de deux miroirs, ce qui permet d'ajuster le plus précisément possible l'incidence du faisceau dans les fibres optiques.

6.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Le couplage du faisceau incident dans chaque fibre optique est réalisé à l'aide d'une lentille convergente, de focale adaptée à l'ouverture numérique de nos fibres ($NA = 0.16$), et fixée sur une platine de translation de haute précision (Thorlabs® Nanomax 300) qui permet de réaliser des déplacements de quelques nanomètres dans les trois directions de l'espace. La fibre optique est quant à elle maintenue à l'aide d'un adaptateur sur un support fixe.

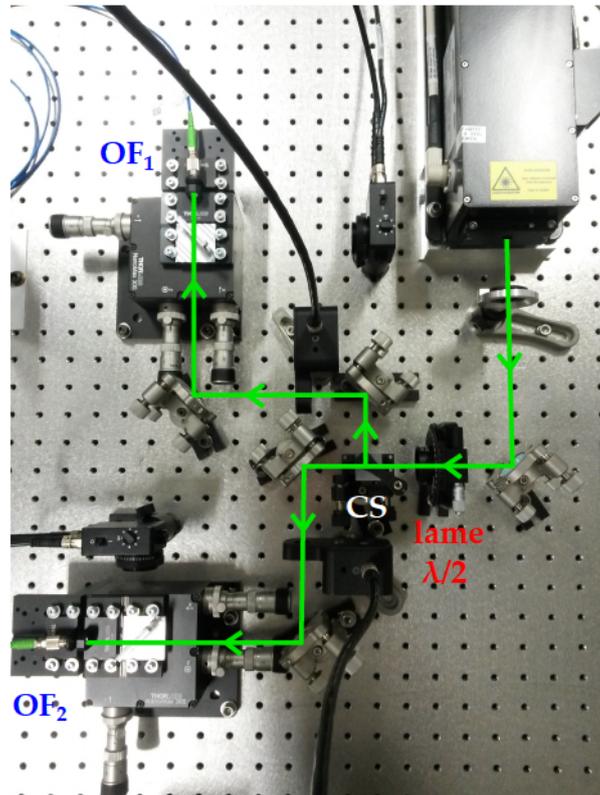


FIGURE 6.3 – Photographie du dispositif optique (vue de dessus). Le faisceau incident est divisé en deux voies par le cube séparateur (CS) et couplé dans les fibres optiques ($OF_{1,2}$). Les flèches vertes représentent le trajet du faisceau laser.

Avec ce dispositif optique, nous avons essayé de garantir un couplage optimal et stable du faisceau incident dans les fibres. En effet, toutes les montures et pieds utilisés pour maintenir les différents éléments optiques possèdent une grande stabilité mécanique. De plus, nous avons limité le trajet optique du faisceau entre chaque élément (dans la limite du possible), d'où une certaine compacité du dispositif.

Caractéristiques des fibres optiques utilisées

Les fibres optiques classiques ne permettant pas d'accepter une puissance laser incidente élevée (au risque d'être endommagées), nous avons donc choisi d'utiliser des fibres optiques à cristal photonique (*PCF* en anglais) qui acceptent un faisceau incident de forte puissance (jusqu'à $\sim 2.3W$ par fibre). Ces guides d'ondes particuliers sont caractérisés par un cœur de silice creux de $5\mu m$ de diamètre qui forme une structure périodique,

comme nous pouvons le voir sur la figure 6.4a. Le principe de confinement de la lumière dans le cœur de ces fibres reste cependant très similaire à celui des fibres classiques, la lumière subit une multitude de réflexions totales internes entre le cœur d'indice de réfraction élevé et la gaine d'indice de réfraction moyen compris entre celui de la silice et de l'air.

La propagation de la lumière dans ces fibres optiques est très voisine d'une propagation monomode ce qui permet d'obtenir un faisceau de profil d'intensité qui peut être considéré gaussien, ce que nous avons vérifié en mesurant le profil radial de puissance à une distance donnée ($z = 122\text{mm}$) de la fibre optique (voir figure 6.4b). Nous pouvons alors déterminer le *waist* ω_0 du faisceau émis (et qui se situe à l'extrémité de la fibre) à partir de ce profil et nous trouvons alors $2\omega_0 = 3.48\mu\text{m}$, ce qui est proche de la taille de champ du mode (ou *MFD*) annoncée par le fabricant ($MFD = 4.2 \pm 0.5\mu\text{m}$).

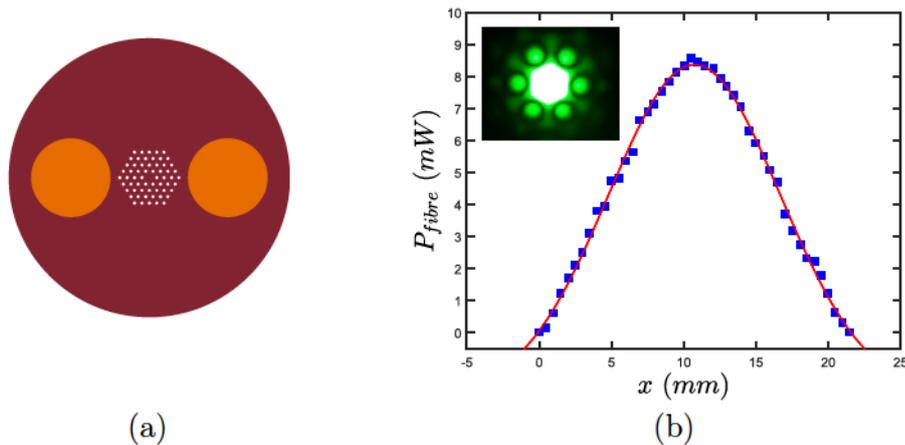


FIGURE 6.4 – (a) Coupe schématique d'une fibre à cristal photonique. (b) Profil radial de puissance d'une fibre optique utilisée. La mesure a été effectuée à une distance $z = 122$ mm de l'extrémité de la fibre.

Une fois le couplage du faisceau incident optimisé dans chaque fibre (valant généralement $C \sim 75\%$), nous dénudons l'extrémité de la fibre optique en retirant sa gaine plastique ainsi qu'une partie de son revêtement, afin que le diamètre final de la fibre soit de $125\mu\text{m}$. Nous nettoyons et clivons à angle droit l'extrémité de chaque fibre pour pouvoir les aligner face à face. Les fibres utilisées étant également à maintien de polarisation, nous obtenons alors un double piège dont les polarisations respectives des faisceaux sont croisées. Notons la polyvalence du système ; par exemple nous pourrions changer de configuration en plaçant une lame quart d'onde tournée à 45° sur chaque voie, de manière à ce que la polarisation devienne circulaire sur chacune des voies du dispositif optique.

6.1.2 Dispositif microfluidique sur puce

L'alignement des fibres optiques dans un double piège est un élément crucial afin d'obtenir un piégeage stable des objets. Il faut alors éviter tout mauvais alignement, transverse ou angulaire, pour s'assurer que les deux faisceaux possèdent le même axe optique. Lorsque les deux fibres ne sont pas correctement alignées, les objets piégés effectuent alors des mouvements de rotation dans la zone du piège, passant ainsi d'un faisceau à l'autre [137, 138], comme nous le montrons schématiquement ci-dessous.

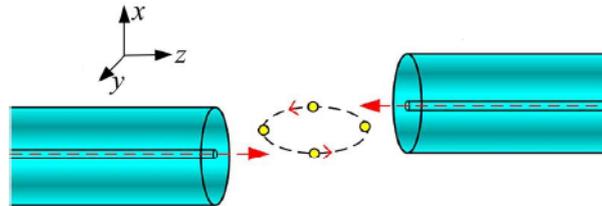


FIGURE 6.5 – *Vue schématique du mouvement orbital induit sur un objet par un mauvais alignement transverse des fibres optiques dans un double piège. Issu de [137].*

Afin de réaliser un alignement précis des fibres optiques dans notre double piège, nous avons conçu dans une première approche une puce microfluidique en résine PDMS réalisée via une technique de photolithographie souple (voir annexe E pour une description détaillée de la procédure). Cette puce est ensuite collée sur une lame de microscope classique, ce qui permet d'obtenir un dispositif très compact pouvant être placé sur un microscope inversé.

Ce dispositif microfluidique de piégeage sur puce permet aussi d'écouler les objets à étudier via un canal rectangulaire de dimensions $150 \times 130 \mu\text{m}$ et perpendiculaire à l'axe des fibres optiques, mais également de réaliser un alignement rapide et très précis de celles-ci par insertion dans des guides disposés de part et d'autre de ce canal (voir figure 6.6a-b). Les dimensions de ces guides carrés sont donc choisies afin d'assurer un maintien parfait de nos fibres optiques. Dans le but de faciliter l'insertion des fibres dans la puce, ces guides sont légèrement plus larges (de $5 \mu\text{m}$) que le diamètre des fibres optiques dénudées.

Un des verrous de ce type de dispositif, mis à part l'alignement des fibres, est également la distance inter-fibre (notée D) optimale afin de piéger optiquement des objets de différents diamètres. Pour cela, nous avons donc doté cette puce microfluidique de guides très rapprochés ($D = 210 \mu\text{m}$) et d'une série de 6 paires de guides, dont la distance D varie de $300 \mu\text{m}$ à $1050 \mu\text{m}$, ce qui nous permet ainsi de faire varier, de façon discrète, la taille des faisceaux divergents au centre du canal ($6.6 \mu\text{m} < \omega_{\text{centre}} < 30.2 \mu\text{m}$).

Cependant, en insérant les fibres optiques dans cette puce, il est possible de "piéger" une lame d'air entre l'extrémité des fibres et la résine PDMS, ce qui peut alors causer

des pertes d'intensité lumineuse par réflexion lors du passage d'un milieu d'indice optique à l'autre (puisque $n_{air} \simeq 1$ et $n_{PDMS} \simeq 1.417$ [139]). Afin de limiter ces pertes, nous réalisons une adaptation d'indice optique en plaçant à l'extrémité des fibres optiques une goutte de gel, dont l'indice de réfraction est très proche de celui de la résine PDMS. Malgré la simplification de l'insertion des fibres apportée par ce gel (par lubrification des guides), cela se révèle en fait problématique puisque celui-ci s'infiltré dans la structure creuse de nos fibres à cristal photonique, ce qui nous a conduit à stopper son utilisation.

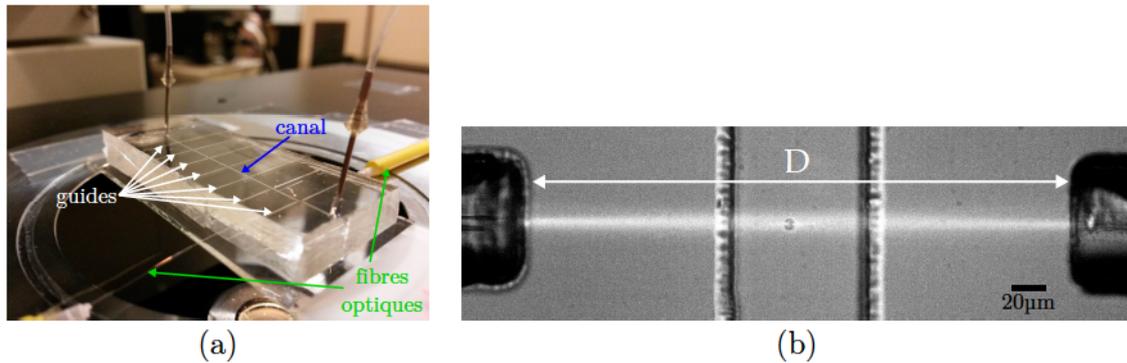


FIGURE 6.6 – (a) Photographie du dispositif de piégeage sur puce. (b) Vue du dispositif de piégeage sur puce au microscope. Une bille de polystyrène est piégée sous l'action des faisceaux divergents.

Dans ce dispositif, la puce microfluidique est percée aux deux extrémités du canal central, constituant ainsi des voies d'entrée et de sortie pour les suspensions d'objets à piéger. Ces deux voies sont reliées à des tubes en PTFE (pour PolyTétraFluoroÉthylène) via des aiguilles de seringue qui permettent l'écoulement des solutions dans la puce, comme nous pouvons le voir sur la figure 6.6a. Les objets à piéger sont injectés dans le canal à l'aide d'une seringue connectée à une vanne à plusieurs voies. Nous basculons ensuite cette vanne vers un réservoir contenant une suspension de nos objets d'étude, ce qui permet d'obtenir un circuit d'écoulement fermé (le tube de sortie étant lui aussi connecté à un réservoir). La vitesse de l'écoulement dans le canal est alors contrôlée en manipulant la différence de pression hydrostatique par ajustement de la hauteur relative des deux réservoirs. Chaque réservoir est placé sur un support, muni d'une vis millimétrique assurant un réglage fin, qui peut être translaté le long d'une tige verticale. Ce système d'ajustement permet donc un contrôle rapide et pratique de la vitesse d'écoulement dans le canal. Ainsi pour amener un objet jusqu'à la zone de piégeage dans le canal, il suffit de faire varier la hauteur relative entre les deux réservoirs. Lorsque l'objet atteint les faisceaux laser, le débit est alors ralenti puis arrêté une fois l'objet piégé, en plaçant les deux réservoirs à la même hauteur.

L'utilisation d'une telle puce microfluidique pour réaliser ce double piège optique pos-

sède de nombreux avantages, elle permet en effet de réaliser une analyse séquentielle et rapide des objets, le tout sur un dispositif miniaturisé tenant sur une lame de microscope (de dimensions 2.5×7.5 cm). De plus, la résine PDMS utilisée ici est particulièrement adaptée à ce dispositif puisqu'elle est chimiquement inerte, perméable aux gaz, thermiquement stable, isotrope et homogène, durable, réutilisable, et peut être produite rapidement et à moindre coût. En outre, cette résine est optiquement transparente, ce qui permet de visualiser le dispositif par microscopie optique classique. Le plancher de notre puce microfluidique sur lequel reposent les fibres optiques correspondant ici à la lame de verre, l'observation est donc ici réalisée avec un microscope inversé reliée à une caméra CMOS (Basler acA1920-155um).

Malgré tous ces avantages, ce dispositif de piégeage sur puce possède néanmoins certaines limitations. En dépit de la relative souplesse du PDMS, l'alignement des fibres dans la puce reste une étape très délicate puisqu'il faut insérer des fibres optiques fragiles de $125\mu\text{m}$ de diamètre dans des guides de $130\mu\text{m}$ de large. Ainsi, il n'est pas rare que la fibre optique se brise au niveau de l'entrée du guide, sans qu'il soit alors possible de retirer le morceau de fibre obstruant le guide, ce qui limite d'une certaine manière la durée de vie de nos puces.

De plus, la souplesse de la résine devient rapidement problématique pour des débits d'injection de liquide trop importants dans la puce. Le canal gonfle alors sous l'effet de la pression exercée par le liquide, ce qui peut conduire à une infiltration de liquide entre la puce et la lame de verre, voire même au décollement de la puce.

La résine PDMS est également un matériau très hydrophobe (angle de contact avec l'eau supérieur à 100° [140]), sur lequel les objets d'études (billes, vésicules...) ont tendance à se coller.

Suites à des expériences préliminaires avec ce double piège optique sur puce, nous avons donc envisagé un second dispositif plus robuste que nous allons décrire dans la prochaine partie.

6.1.3 Dispositif microfluidique avec capillaire

Afin de s'affranchir des problèmes rencontrés avec la puce microfluidique en PDMS, nous avons donc développé un dispositif dans lequel les fibres optiques sont cette fois disposées perpendiculairement à un capillaire en verre, de section carrée et de taille micrométrique. Ce capillaire, traversé par les faisceaux laser divergents, constitue alors un canal rigide qui permet de faire écouler les objets jusqu'à la zone de piégeage.

Dans ce dispositif, inspiré des travaux de Lincoln *et al.* [141] les fibres optiques ainsi

que le capillaire sont alignés dans les rainures d'un motif réalisé en PDMS sur une lame de microscope par photolithographie souple. Le motif consiste alors en une rainure centrale dans laquelle le capillaire est disposé et de rainures perpendiculaires à celui-ci servant à l'alignement des fibres optiques, comme schématisé sur la figure 6.7. L'épaisseur du motif est alors choisi afin de maintenir suffisamment le capillaire sans masquer sa partie interne, où s'écoule les objets à étudier. Le capillaire possédant un diamètre externe de $160\mu\text{m}$ et interne de $80\mu\text{m}$, nous avons alors choisi une épaisseur $e = 50\mu\text{m}$ pour le motif, ce qui est légèrement supérieur à la taille des parois du capillaire. La largeur de la rainure centrale est de $165\mu\text{m}$, ce qui assure un bon maintien du capillaire tout en facilitant sa mise en place sur le motif.

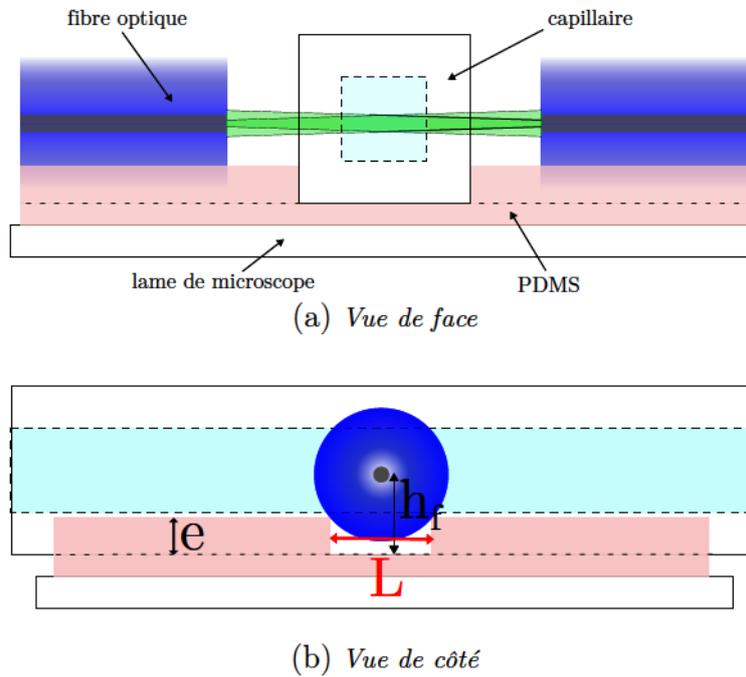


FIGURE 6.7 – Représentation schématique du dispositif microfluidique avec capillaire.

L'alignement des fibres optiques est réalisé en les disposant entre deux couches voisines de PDMS, séparées par une rainure agissant comme un rail qui surélève les fibres optiques par rapport au capillaire, comme nous le montrons sur la figure 6.7b. Afin d'apporter une certaine polyvalence à ce dispositif, et d'anticiper tout phénomène de sédimentation des objets dans le capillaire, nous avons réalisé 3 séries de rainures de différentes largeurs ce qui permet d'ajuster la hauteur du double piège optique dans le capillaire. En effet, la hauteur h_f de l'axe de la fibre optique est directement liée à la largeur L de la rainure par la relation :

$$L = \sqrt{R_f^2 - (h_f - e)^2}$$

où $R_f = 62.5\mu\text{m}$ est le rayon de la fibre optique et $e = 50\mu\text{m}$ est l'épaisseur du motif.

6.1. MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Nous avons donc réalisé des rainures de largeur $L = 130\mu\text{m}$, $L = 110\mu\text{m}$ et $L = 75\mu\text{m}$ ce qui permet de piéger respectivement à environ $1/4$, $1/2$ et $3/4$ de la hauteur du capillaire. Notons que pour $L = 130\mu\text{m}$, la fibre optique repose alors entre les deux couches de PDMS et donc $h_f = R_f = 62.5\mu\text{m}$.

La distance fibre à fibre D est quant à elle ajustée de façon symétrique au capillaire, par observation du dispositif au microscope, et peut varier de manière continue (contrairement au dispositif sur puce). Ainsi nous pouvons augmenter ou diminuer la taille des faisceaux du double piège optique en rapprochant plus ou moins les fibres optiques du capillaire, dans la limite où les faisceaux divergents n'interfèrent pas avec le plancher du capillaire.

Une fois le capillaire et les fibres optiques mis en place sur le motif, les différents éléments sont ensuite recouverts d'une fine couche de PDMS (d'épaisseur millimétrique), surmontée d'une lamelle de microscope. Le tout est maintenu par une plaque de plexiglas vissée dans un support spécialement conçu pour accueillir ce dispositif, qui est fixé sur la platine d'un microscope inversé (voir figure 6.8).

L'empilement de ces couches permet alors d'assurer le maintien des différents composants et donc d'augmenter la robustesse du dispositif. Une fois le dispositif scellé, l'alignement vertical des fibres optiques est vérifié par imagerie du cœur des fibres en microscopie à contraste de phase, et peut être finement ajusté en serrant plus ou moins les vis maintenant la plaque de plexiglas.

Nous relierons enfin le capillaire à des tubes souples en PTFE via des connecteurs standards munis de ferrules en graphite. Ces ferrules se déforment au serrage des connecteurs, épousant ainsi la forme du capillaire, ce qui permet d'assurer l'étanchéité du dispositif et d'éviter la formation de bulles d'air. Ces tubes, placés en entrée et sortie du capillaire, sont ensuite insérés dans des réservoirs contenant une suspension d'objets à étudier, comme décrit précédemment.

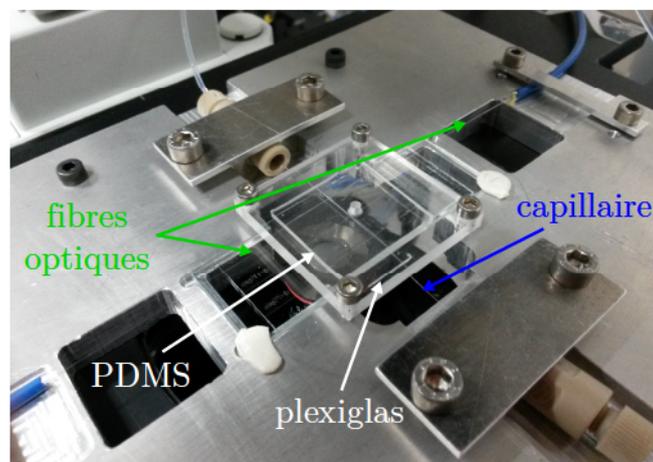


FIGURE 6.8 – Photographie du double piège optique réalisé avec le dispositif microfluidique avec capillaire.

Cette seconde configuration du double piège optique se révèle donc avantageuse sur de nombreux aspects par rapport au dispositif sur puce microfluidique. En effet, l'environnement rigide du capillaire en verre où s'écoule les objets permet de pallier les problèmes de fuites ou de gonflement du canal que nous avons pu rencontrés. Ce capillaire étant en verre de borosilicate, il est optiquement transparent et homogène, et permet également d'éviter toutes modifications du profil des faisceaux à leurs traversées. Enfin, le verre permet de faire écouler la majorité des solvants dans ce capillaire (ce qui facilite notamment son nettoyage).

De plus, ce dispositif étant plus robuste, il peut être utilisé sur une longue période sans nécessiter de nouvel alignement des fibres optiques ou du capillaire.

En revanche, ce second dispositif conceptuellement simple est techniquement plus complexe à mettre en place et moins souple dans son fonctionnement que la puce microfluidique présentée précédemment. En effet, l'alignement des différents éléments sur le motif nécessite une grande précision, puisque le capillaire doit reposer à plat dans sa rainure afin d'éviter une déviation des faisceaux incidents, et les fibres doivent reposer entre deux fines couches de PDMS. En outre, cet alignement est susceptible d'être perturbé lors de la mise en place des différentes couches sur le motif.

Néanmoins, ce dispositif est plus stable et permet simplement, une fois mis en place, de piéger et déformer des objets mous, tout en évitant les problèmes élastiques liés au PDMS.

6.1.4 Propagation du faisceau laser

Afin de connaître les forces optiques qui s'exercent sur les objets piégés, il est nécessaire de connaître la taille du faisceau laser au centre du piège. Pour cela nous allons calculer la propagation du faisceau laser dans le dispositif microfluidique via un formalisme matriciel. Le faisceau laser issu des fibres optiques pouvant être considéré gaussien, ses caractéristiques sont alors décrites par un rayon de courbure complexe $q(z)$ tel que :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{z + iz_R} = \frac{1}{R_c(z)} - i \frac{\lambda_0}{n_k \pi \omega^2(z)} \quad (6.1)$$

où $z_R = n_k \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda_0}$ est la longueur de Rayleigh, $R_c(z)$ est le rayon de courbure du front d'onde et $\omega(z)$ est le rayon du faisceau à une distance z de son *waist*.

Lorsqu'un faisceau laser incident traverse un élément optique, ses caractéristiques, et donc son rayon de courbure, sont alors modifiés. Dans le formalisme matriciel utilisé, valable dans l'approximation paraxiale, chaque élément optique est décrit par une matrice

de transfert ABCD de dimensions 2×2 de la forme :

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \quad (6.2)$$

Ainsi nous pouvons obtenir le rayon de courbure q_f en sortie de l'élément optique en connaissant le rayon de courbure q_i en entrée grâce à la loi :

$$q_f = \frac{Aq_i + B}{Cq_i + D} \quad (6.3)$$

Nous présentons maintenant la propagation du faisceau dans le dispositif avec capillaire, étant donné que les expériences présentées dans le chapitre suivant ont été réalisées pour cette configuration.

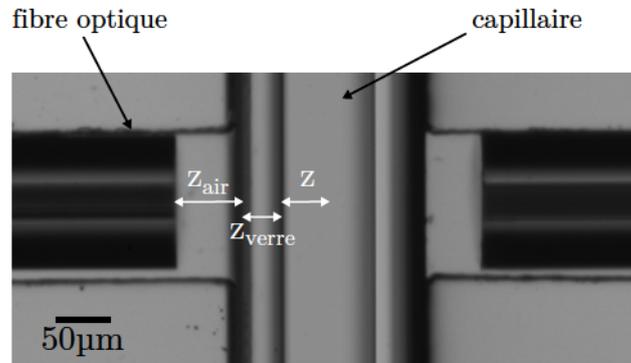


FIGURE 6.9 – Double piège optique réalisé avec le dispositif microfluidique avec capillaire observé au microscope.

Dans ce dispositif, le faisceau se propage tout d'abord dans l'air sur une distance z_{air} , et traverse ensuite un premier dioptré plan air/verre défini par la paroi externe du capillaire. Le faisceau se propage dans le verre sur une distance z_{verre} correspondant à l'épaisseur des parois du capillaire (ici $z_{verre} = 40\mu\text{m}$). Puis il rencontre un second dioptré plan verre/solution défini par la paroi interne du capillaire. Enfin le faisceau se propage sur une distance z dans un milieu d'indice n_1 correspondant à la solution.

La propagation libre d'un faisceau laser sur une distance z_a dans un milieu d'indice n_a est décrite par :

$$M_{z_a} = \begin{pmatrix} 1 & z_a \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (6.4)$$

et la traversée d'un dioptré plan séparant deux milieux d'indice de réfraction respectif n_a et n_b est décrite par :

$$M_{n_a \rightarrow n_b} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{n_a}{n_b} \end{pmatrix} \quad (6.5)$$

Nous décrivons alors la propagation du faisceau laser dans le dispositif microfluidique par

une matrice de transfert M_T obtenue en multipliant les matrices correspondant à chaque élément, dans l'ordre inverse de leur traversée :

$$\begin{aligned} M_T &= M_z \cdot M_{n_{\text{verre}} \rightarrow n_1} \cdot M_{z_{\text{verre}}} \cdot M_{n_{\text{air}} \rightarrow n_{\text{verre}}} \cdot M_{z_{\text{air}}} \\ &= \begin{pmatrix} 1 & z \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{n_{\text{verre}}}{n_1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & z_{\text{verre}} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{n_{\text{air}}}{n_{\text{verre}}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & z_{\text{air}} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (6.6)$$

ce qui donne alors

$$M_T = \begin{pmatrix} A_T & B_T \\ C_T & D_T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & z_{\text{air}} + z_{\text{verre}} \frac{n_{\text{air}}}{n_{\text{verre}}} + z \frac{n_{\text{air}}}{n_1} \\ 0 & \frac{n_{\text{air}}}{n_1} \end{pmatrix} \quad (6.7)$$

En utilisant la formule 6.3, le rayon de courbure complexe $q_f(z)$ du faisceau laser à une distance z de la paroi interne du capillaire, après traversée des différents éléments, est donné par :

$$q_f(z) = \frac{q_i + B_T}{n_{\text{air}}/n_1} \quad (6.8)$$

avec $q_i = iz_R = in_{\text{air}} \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda_0}$ d'où

$$\frac{1}{q_f(z)} = \frac{n_{\text{air}}}{n_1} \frac{B_T - iz_R}{B_T^2 + z_R^2} \quad (6.9)$$

Nous déduisons alors de cette expression la taille du faisceau $\omega(z)$ dans le capillaire ainsi que le rayon de courbure $R_c(z)$ du front d'onde correspondant par identification des termes à partir de l'expression 6.1 :

$$\begin{aligned} \omega(z) &= \omega_0 \sqrt{1 + \frac{B_T^2}{z_R^2}} \\ R_c(z) &= \frac{n_1}{n_{\text{air}}} B_T \left(1 + \frac{z_R^2}{B_T^2} \right) \end{aligned} \quad (6.10)$$

avec $B_T = z_{\text{air}} + z_{\text{verre}} \frac{n_{\text{air}}}{n_{\text{verre}}} + z \frac{n_{\text{air}}}{n_1}$.

Ces expressions nous permettent ainsi de connaître la taille du faisceau laser dans le capillaire.

Remarquons que nous avons considéré dans ce calcul matriciel les distances géométriques pour une propagation libre. Ce résultat provient du fait que nous tenons compte de l'indice de réfraction dans l'expression de la longueur de Rayleigh. Nous retrouvons ainsi les mêmes expressions que celles de la littérature [141].

6.2 Contraintes et forces optiques exercées dans un double piège optique

Suite à ses travaux pionniers sur le piégeage optique [4, 44], Ashkin a établi une expression analytique de la force optique globale appliquée par un faisceau incident sur une sphère diélectrique grâce à une décomposition en série de rayons optiques de ce dernier [142]. Cependant, l'approche d'Ashkin ne permet pas d'obtenir une détermination de la contrainte optique locale appliquée par le faisceau incident en chaque point de la surface de l'objet. Dans cette partie, nous allons donc présenter le modèle utilisé dans cette étude pour déterminer les contraintes et forces optiques locales subies par un objet de géométrie sphérique dans notre double piège.

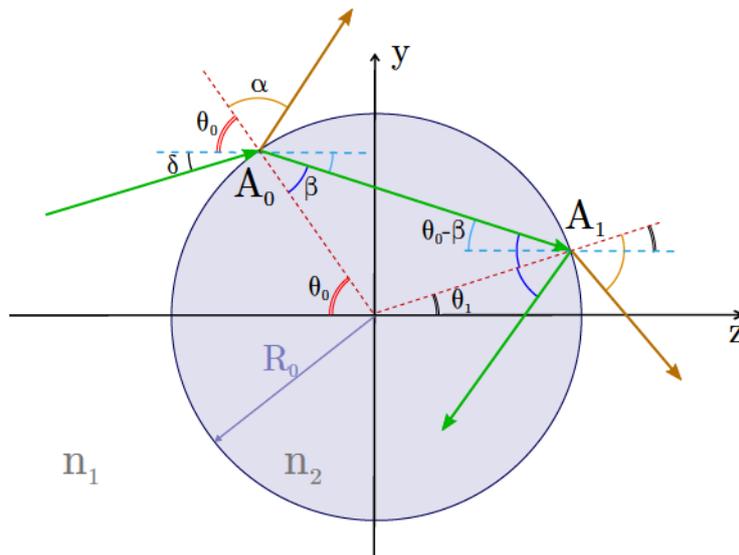


FIGURE 6.10 – *Modèle utilisé pour le calcul des contraintes optiques sur un objet sphérique.*

Dans notre modèle, basé sur les travaux de Bareil *et al.* [143], nous considérons un objet sphérique (homogène et isotrope) de rayon R_0 , et d'indice de réfraction n_2 , placé à une distance d de l'extrémité de chaque fibre optique. Pour simplifier le problème, nous considérons ici que l'objet et les fibres optiques sont placés dans un milieu homogène d'indice de réfraction $n_1 < n_2$ (ce qui est une condition nécessaire pour piéger optiquement un objet). Le *waist* $\omega(z)$ et le rayon de courbure $R_c(z)$ du faisceau après une traversée z dans le milieu s'obtiennent alors simplement en considérant $B_T = z$ dans les expressions 6.10.

Dans cette approche, chaque faisceau laser gaussien émis par les fibres optiques est décomposé en rayons lumineux individuels, chacun caractérisé par une incidence et une position précise sur l'objet et transportant une certaine quantité de mouvement $p = \frac{n_1 E}{c}$ (où E est l'énergie portée par chaque rayon). Notons que cette approche d'optique géométrique

reste valable dans la mesure où la taille des objets étudiés (typiquement $R_0 \sim 5 - 30\mu\text{m}$) est supérieure à la longueur d'onde des faisceaux laser $\lambda_0 = 532\text{nm}$, ce qui permet de vérifier la condition $2\pi R_0/\lambda_0 \gg 1$.

Du fait de la discontinuité des indices de réfraction entre l'objet et son milieu environnant, un rayon incident avec un angle α au point A_0 de la surface de l'objet est alors partiellement réfléchi et réfracté avec un angle β suivant la loi de Snell-Descartes $n_1 \sin \alpha = n_2 \sin \beta$, et subit ensuite de nombreuses réflexions internes dans l'objet, ce qui est illustré schématiquement sur la figure 6.10. D'après le principe de conservation de l'impulsion appliqué à un rayon incident, la variation de quantité de mouvement locale à la surface de l'objet à chaque impact s'écrit alors :

$$\vec{d}p = \vec{p}_i - (\vec{p}_r + \vec{p}_t) \quad (6.11)$$

avec $\vec{p}_i = p_i \vec{u}_i$, $\vec{p}_t = p_t \vec{u}_t$ et $\vec{p}_r = p_r \vec{u}_r$ les impulsions du rayon incident, transmis et réfléchi respectivement.

D'après les résultats établis au chapitre 2, la contrainte optique locale $\sigma(\theta_k)$ (ou pression de radiation) induite par un rayon incident en un point de la surface de l'objet de coordonnée angulaire θ_k s'écrit alors :

$$\sigma(\theta_k) = \frac{n_1 I(\theta_k)}{c} Q(\theta_k) \quad (6.12)$$

où $I(\theta_k)$ est l'intensité lumineuse du rayon incident sur la surface de l'objet et $Q(\theta_k) = \sqrt{Q_y^2(\theta_k) + Q_z^2(\theta_k)}$ est la norme du transfert de quantité de mouvement adimensionné défini par $\vec{Q} = \frac{\vec{d}p}{n_1 E/c}$.

Le calcul de la contrainte optique locale sur un objet sphérique, qui est présenté dans les parties suivantes, se résume donc à déterminer le vecteur \vec{Q} pour chaque rayon lumineux composant le faisceau incident, cela à chaque impact. Il nous faut alors déterminer les différents angles pour chaque rayon lumineux, ce qui peut être fait par une analyse trigonométrique, et que nous allons présenter dans la partie suivante.

6.2.1 Contraintes optiques induites par un faisceau laser divergent

Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à la contrainte optique exercée localement sur l'objet sphérique par un seul faisceau divergent.

Nous considérons ici la situation décrite schématiquement sur la figure 6.10 et, par soucis de simplicité, nous explicitons le calcul de la contrainte optique locale pour un seul

6.2. CONTRAINTES ET FORCES OPTIQUES EXERCÉES DANS UN DOUBLE PIÈGE OPTIQUE

rayon d'incidence α sur l'objet de rayon R_0 dont le centre est situé à une distance d de la fibre optique (et par conséquent du *waist* ω_0 du faisceau incident). Pour une distance d donnée, il existe alors un seul point A_0 de coordonnée angulaire θ_0 pour laquelle un rayon d'incidence α intercepte la surface de l'objet.

$$\begin{aligned}\theta_0 &= \alpha - \delta \\ \delta &= \arcsin\left(\frac{R_0 \sin \theta_0}{R_c(\theta_0)}\right)\end{aligned}\quad (6.13)$$

où δ est l'angle entre le rayon incident et la direction \vec{e}_z et $R_c(\theta_0)$ est le rayon de courbure du faisceau incident au point d'impact.

Le rayon réfracté se propage ensuite dans l'objet et intercepte la surface de celui-ci avec un angle d'incidence β (par construction), en un point A_1 de la surface de coordonnée angulaire valant alors $\theta_1 = 2\beta - \theta_0$. En ce point A_1 , le rayon est partiellement réfracté suivant l'angle α (puisque $n_2 \sin \beta = n_1 \sin \alpha$), et subit une première réflexion interne. Ce rayon réfléchi une première fois subit ensuite de nombreuses réflexions internes et réfractions. À chaque réflexion interne dans l'objet, le rayon est alors dévié d'un angle $(\pi - 2\beta)$.

Connaissant les différents angles du problème, nous pouvons alors déduire le vecteur \vec{Q} intervenant dans l'expression de la contrainte optique locale. En posant $n = \frac{n_2}{n_1}$, nous trouvons par exemple au premier impact (au point A_0) :

$$\begin{aligned}\vec{Q}(\theta_0) &= [\sin(\alpha - \theta_0) - R(\alpha) \sin(\alpha + \theta_0) + nT(\alpha) \sin(\theta_0 - \beta)] \vec{u}_y \\ &\quad + [\cos(\alpha - \theta_0) + R(\alpha) \cos(\alpha + \theta_0) - nT(\alpha) \cos(\theta_0 - \beta)] \vec{u}_z\end{aligned}\quad (6.14)$$

Au second impact, donc à la première réflexion interne (au point A_1), nous trouvons :

$$\begin{aligned}\vec{Q}(\theta_1) &= [nT(\alpha) \sin(\beta - \theta_0) + nT(\alpha)R(\beta) \sin(3\beta - \theta_0) - nT(\alpha)T(\beta) \sin(2\beta - \alpha - \theta_0)] \vec{u}_y \\ &\quad + [nT(\alpha) \cos(\beta - \theta_0) + nT(\alpha)R(\beta) \cos(3\beta - \theta_0) - T(\alpha)T(\beta) \cos(2\beta - \alpha - \theta_0)] \vec{u}_z\end{aligned}\quad (6.15)$$

Nous pouvons ainsi calculer le vecteur \vec{Q} pour chaque réflexion interne puisque l'expression des quantités de mouvement des rayons incident, réfracté et réfléchi peut être généralisée, ce qui donne pour la $k^{\text{ième}}$ réflexion interne ($k \geq 1$) :

$$\begin{aligned}\vec{p}_{ik} &= nT(\alpha)R^{k-1}(\beta)(-1)^{k-1} [\cos((2k-1)\beta - \theta_0)\vec{u}_z + \sin((2k-1)\beta - \theta_0)\vec{u}_y] \\ \vec{p}_{rk} &= nT(\alpha)R^k(\beta)(-1)^k [\cos((2k+1)\beta - \theta_0)\vec{u}_z + \sin((2k+1)\beta - \theta_0)\vec{u}_y] \\ \vec{p}_{tk} &= T(\alpha)R^{k-1}(\beta)T(\beta)(-1)^{k-1} [\cos(2k\beta - \theta_0 - \alpha)\vec{u}_z + \sin(2k\beta - \theta_0 - \alpha)\vec{u}_y]\end{aligned}\quad (6.16)$$

Nous pouvons alors déterminer la contrainte optique locale exercée par un rayon incident sur l'objet sphérique à chaque impact par la relation :

$$\sigma(\theta_k) = \frac{n_1 I(\theta_k)}{c} Q(\theta_k) \quad (6.17)$$

Un point de la surface de l'objet de cordonnée angulaire θ_k étant repéré par $z_k = d - R \cos \theta_k$ et $y_k = R \sin \theta_k$, l'intensité laser en ce point s'écrit alors :

$$I(\theta_k) = \frac{2P}{\pi \omega^2(z_k)} \exp\left(-2 \frac{R_0^2 \sin^2 \theta_k}{\omega^2(z_k)}\right) \quad (6.18)$$

En calculant la contrainte optique locale $\sigma(\theta_k)$ de cette manière pour chaque rayon composant le faisceau laser incident, nous obtenons alors le profil des contraintes optiques sur l'objet. Un exemple de profil est présenté en figure 6.11a, où nous avons considéré un objet sphérique de rayon $R_0 = 5 \mu\text{m}$ et d'indice de réfraction $n_2 = 1.55$ placé dans de l'eau ($n_1 = 1.33$). Le centre de cet objet est placé à une distance $d = 150 \mu\text{m}$ de l'extrémité de la fibre optique émettant un faisceau de puissance $P = 1 \text{ W}$ (avec $\omega_0 = 2.1 \mu\text{m}$).

Les coefficients de Fresnel R et T intervenant dans le calcul du vecteur \vec{Q} étant inférieurs à 1, les contributions des réflexions internes d'ordre k élevé à la contrainte optique sont donc très faibles. Nous considérons donc ici uniquement les 3 premières réflexions internes (donc 4 impacts au total).

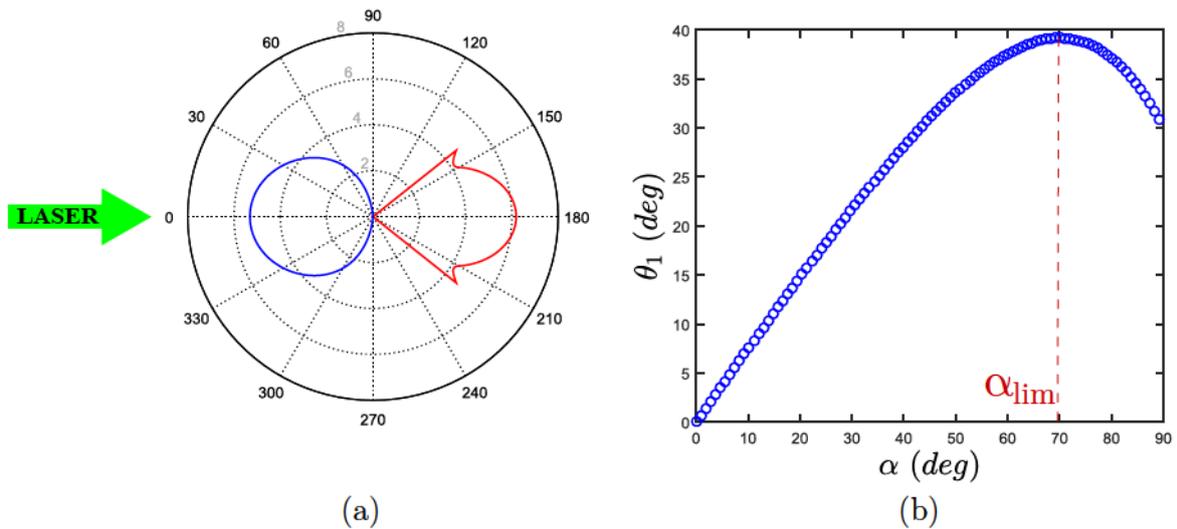


FIGURE 6.11 – (a) Profil des contraintes optiques exercées sur la face avant (en bleu) et la face arrière (en rouge) d'un objet sphérique par un seul faisceau laser divergent. L'échelle des contraintes (en gris) est indiquée en Pascal (Pa). (b) Position angulaire θ_1 du premier rayon réfracté en fonction de l'angle d'incidence α . Les caractéristiques de l'objet, placé dans un milieu d'indice optique $n_1 = 1.33$, sont $R_0 = 5 \mu\text{m}$ et $n_2 = 1.55$. Dans cet exemple, $d = 150 \mu\text{m}$, $P = 1 \text{ W}$ et $\omega_0 = 2.1 \mu\text{m}$.

6.2. CONTRAINTES ET FORCES OPTIQUES EXERCÉES DANS UN DOUBLE PIÈGE OPTIQUE

Nous remarquons tout de suite que ce profil est asymétrique, ce qui est logique puisque nous considérons ici l'action d'un seul faisceau laser sur l'objet. Nous pouvons alors séparer ce profil en deux parties, une contrainte optique σ_F exercée sur la face avant de l'objet (la plus proche de la fibre optique) et une contrainte optique σ_B exercée sur la face arrière (due uniquement aux rayons réfractés et aux réflexions internes). Ainsi en intégrant les contraintes optiques locales $\sigma_{F,B}(\theta)$ sur un anneau de rayon R_0 et d'épaisseur $d\theta$ défini par la direction θ , il est possible d'en déduire la force optique résultante $F_{F,B}$ sur chaque face de l'objet.

$$F_{F,B} = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sigma_{F,B}(\theta) 2\pi R_0^2 \sin \theta d\theta \quad (6.19)$$

L'objet sphérique étant centré sur l'axe du faisceau laser, la force résultante appelée force de *scattering* est alors dirigée selon la direction \vec{e}_z (par symétrie). Sur le profil présenté en exemple sur la figure 6.11a, nous trouvons alors $F_B = 269.4$ pN et $F_F = 152.7$ pN. Cela signifie donc que la force de *scattering* résultante $\vec{F}_{scatt} = (F_B - F_F)\vec{e}_z$ pousse l'objet dans la direction de propagation du faisceau laser divergent.

Nous observons de plus sur la face arrière de l'objet l'émergence de pics de la contrainte optique pour un certain angle limite ($\simeq 140^\circ$ soit $\theta_1 \simeq 40^\circ$ par rapport à l'axe du faisceau dans cet exemple) au-dessus duquel celle-ci devient nulle. Ce comportement s'explique en considérant l'action des rayons incidents sur la face avant, qui se réfractent et atteignent alors la surface de la sphère en un point A_1 de coordonnées θ_1 [143]. D'après les résultats établis précédemment, cet angle peut s'exprimer par $\theta_1 = 2 \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2} \sin \alpha\right) - \alpha + \delta$. En étudiant le comportement de l'angle θ_1 par rapport à l'angle d'incidence α (voir figure 6.11b), nous remarquons que θ_1 augmente de façon monotone avec l'angle d'incidence, jusqu'à atteindre une valeur limite $\theta_1^{lim} \simeq 40^\circ$ pour une incidence $\alpha^{lim} \simeq 70^\circ$ au-dessus de laquelle θ_1 décroît. Cela signifie donc qu'aucun rayon incident sur la face avant de l'objet ne peut être réfracté en un point de position angulaire supérieure à θ_1^{lim} .

En outre, il existe une gamme d'incidence α sur laquelle deux rayons incidents peuvent atteindre le même point θ_1 , comme nous le constatons sur la figure 6.11b. Cela explique l'émergence des pics sur le profil des contraintes optiques. Ajoutons que ces pics sont dus à l'approche géométrique utilisée dans ce modèle et n'apparaissent pas avec une approche ondulatoire [144].

Dans cette partie, nous venons de déterminer les contraintes optiques induites par un seul faisceau laser. Nous allons donc considérer l'action de deux faisceaux laser divergents sur un objet sphérique dans la prochaine partie.

6.2.2 Contraintes optiques induites par deux faisceaux laser divergents

Dans un double piège, le profil des contraintes optiques induites sur un objet s'obtient alors simplement en sommant les contributions de chaque faisceau laser divergent. La contrainte optique totale σ_G^{tot} exercée sur la face gauche par exemple s'écrit alors :

$$\sigma_G^{tot} = \sigma_{F,1} + \sigma_{B,2} \quad (6.20)$$

où $\sigma_{F,1}$ est la contrainte optique exercée par le faisceau 1 venant de gauche et $\sigma_{B,2}$ est la contrainte optique exercée par le faisceau 2 venant de droite.

Le profil de contraintes optiques induites par deux faisceaux laser divergents sur le même objet de rayon $R_0 = 5\mu\text{m}$ et d'indice optique $n_2 = 1.55$ que précédemment est présenté sur la figure 6.12. Nous considérons ici les mêmes conditions que dans la partie précédente à savoir $n_1 = 1.33$, $d = 150\mu\text{m}$ et $P = 1\text{ W}$ pour chaque faisceau incident (avec $\omega_0 = 2.1\mu\text{m}$).

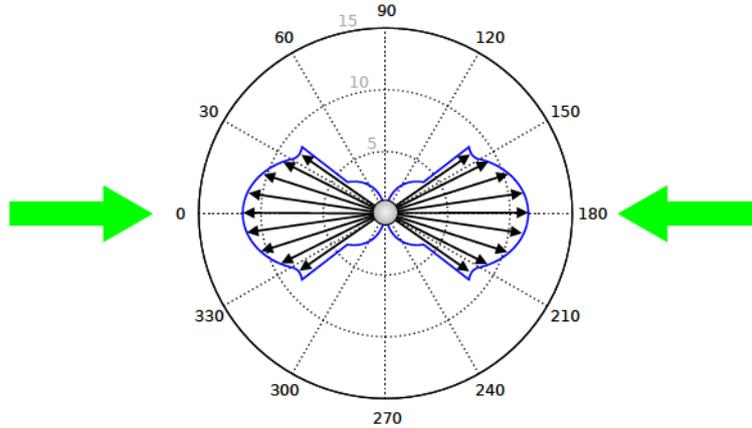


FIGURE 6.12 – Profil des contraintes optiques (en Pa) exercées dans un double piège optique sur un objet sphérique. Les caractéristiques de l'objet, placé dans un milieu d'indice optique $n_1 = 1.33$, sont $R_0 = 5\mu\text{m}$ et $n_2 = 1.55$. Dans cet exemple, $d = 150\mu\text{m}$, $P = 1\text{ W}$ et $\omega_0 = 2.1\mu\text{m}$ pour chaque faisceau incident.

Nous obtenons cette fois un profil de contraintes optiques qui est symétrique, ce qui signifie que la force optique résultante sur l'objet dans la direction \vec{e}_z est nulle et donc que l'objet est piégé à une position d'équilibre stable. De façon assez contre-intuitive, bien que chaque faisceau laser pousse l'objet dans sa direction de propagation, un objet mou et déformable peut être étiré sous l'action des contraintes optiques, celles-ci étant normales en tout point de l'objet comme nous l'avons montré au chapitre 2. Cela explique alors

6.2. CONTRAINTES ET FORCES OPTIQUES EXERCÉES DANS UN DOUBLE PIÈGE OPTIQUE

pourquoi ce double piège optique est communément appelé *optical stretcher*.

Nous observons toujours l'émergence de pics de la contrainte optique sur le profil pour le même angle limite que précédemment ($\theta \simeq 40^\circ$), la contrainte correspondante étant cette fois plus importante puisqu'un rayon incident provenant du second faisceau laser peut atteindre ce point particulier et donc contribuer à la contrainte totale. Contrairement au cas d'un objet éclairé par un seul faisceau laser divergent, la contrainte optique totale n'est pas nulle pour des angles θ supérieurs à l'angle limite dans un double piège optique.

Nous pouvons décomposer chaque face de l'objet (gauche ou droite) en 4 régions distinctes. Dans la première région définie par $0^\circ < \theta < 31^\circ$ pour cet exemple, la contrainte optique totale en un point résulte de l'action d'un rayon incident atteignant la surface depuis l'extérieur de l'objet ainsi que d'un rayon réfracté au même point (et des réflexions internes) provenant de l'autre faisceau.

Dans la seconde région définie par $31^\circ < \theta < 40^\circ$, deux rayons incidents peuvent être réfractés au même point comme nous l'avons montré précédemment (voir figure 6.11b). La contrainte optique totale dans cette région résulte donc de ces deux rayons réfractés et d'un rayon incident issu du second faisceau.

Dans la troisième région définie par $40^\circ < \theta < 89^\circ$, seuls les rayons incidents et les réflexions secondaires peuvent atteindre la surface de l'objet. Le profil de contraintes optiques correspond donc à celui induit par un seul faisceau laser sur la face avant de l'objet (voir profil en figure 6.11a).

Enfin, la dernière région correspond à une zone où aucun rayon ne peut atteindre la surface de l'objet et pour laquelle la contrainte optique est donc nulle (ici pour $\theta > 89^\circ$).

La forme de ces profils et donc la taille de ces différentes régions dépend de l'incidence des rayons lumineux sur l'objet, ce qui peut être modifié par une variation du rayon de l'objet R_0 considéré, de la distance d entre les fibres et l'objet, ou encore des indices de réfraction n_1 et n_2 . Nous présentons en figure 6.13 le profil des contraintes optiques exercées sur des objets sphériques de différentes tailles R_0 .

Nous remarquons que les pics sont d'autant moins marqués que le rayon R_0 de l'objet augmente. De plus la contrainte maximale appliquée sur l'axe des faisceaux ($\theta = 0^\circ$), aussi appelée *peakstress* et notée σ_0 , augmente avec R_0 .

La distance d entre le centre de l'objet et les fibres optiques est ici fixée ($d = 150\mu\text{m}$), ce qui conduit à une taille de faisceau au centre de l'objet de $\omega(d) = 9.33\mu\text{m}$. Ainsi en variant le rayon de l'objet, celui-ci est plus ou moins éclairé par le faisceau, ce qui peut se caractériser par le rapport $R_0/\omega(d)$. Pour $R_0 = 1\mu\text{m}$ l'objet est totalement éclairé par les faisceaux incidents ($R_0/\omega(d) \simeq 0.11$) alors que pour $R_0 = 15\mu\text{m}$ seule la partie de l'objet

la plus proche de l'axe des faisceaux est éclairée ($R_0/\omega(d) \simeq 1.61$). Lorsque le rapport $R_0/\omega(d)$ augmente, l'incidence α des rayons sur l'objet devient alors plus faible, ce qui entraîne la disparition des pics sur le profil des contraintes optiques, et une augmentation de σ_0 , les rayons étant réfléchis dans l'objet sur une région plus étroite (située proche de l'axe).

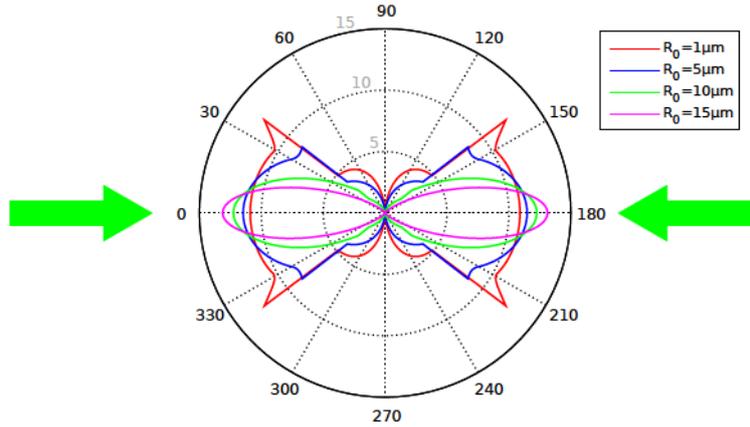


FIGURE 6.13 – Profil des contraintes optiques (en Pa) exercées dans un double piège optique sur des objets sphériques de taille R_0 variable. Les indices optiques de l'objet et du milieu environnant sont respectivement $n_2 = 1.55$ et $n_1 = 1.33$. Dans cet exemple, $d = 150\mu m$, $P = 1 W$ et $\omega_0 = 2.1\mu m$ pour chaque faisceau incident.

Notons que dans les calculs de contraintes présentés ici, nous considérons les coefficients de Fresnel R et T comme étant la moyenne des coefficients pour les polarisations perpendiculaire et parallèle par rapport au plan d'incidence. Cela conduit alors à un écart négligeable de quelques pourcents entre les contraintes optiques calculées et réelles, mais cette hypothèse permet de simplifier le calcul et de préserver la symétrie du problème par rapport à l'axe des faisceaux laser.

6.3 Calibration du double piège

Dans cette partie, nous allons décrire le principe de calibration de notre double piège optique, qui nous permet de déterminer la puissance émise par chaque fibre. En effet, comme nous l'avons vu lors de la description du dispositif microfluidique, aucune mesure directe de puissance (à l'aide d'un puissance-mètre par exemple) n'est possible une fois le dispositif mis en place, celui-ci étant de très faibles dimensions et recouvert de différentes couches assurant le maintien des composants (voir partie 6.1.3). Ainsi, bien qu'il soit possible de mesurer la puissance laser en entrée et en sortie de chaque fibre optique (pour déterminer le couplage) avant de les aligner dans le dispositif, il est commode de pouvoir

déterminer la puissance incidente sur les objets dans le capillaire. Le couplage du faisceau laser dans les fibres optiques pouvant évoluer dans le temps (au bout de plusieurs jours), cette méthode de calibration permet alors de connaître précisément la puissance en sortie de fibre sans nécessiter le démontage complet du dispositif microfluidique.

Nous avons exploité ici l'effet de la force de *scattering* F_{scatt}^{\rightarrow} induite par un faisceau laser sur un objet sphérique. La méthode de calibration consiste alors en l'étude du déplacement d'une bille de polystyrène ($n_2 = 1.59$) de rayon $R_0 = 3$ ou $5\mu\text{m}$ sous l'action de la force optique exercée par un faisceau gaussien issue d'une fibre optique [145]. Pour ce faire, nous piégeons optiquement cette bille au centre du capillaire dans notre double piège optique puis nous occultons une des deux fibres (à l'aide d'un *shutter* mécanique) pour que la bille soit poussée sous l'action du faisceau laser restant.

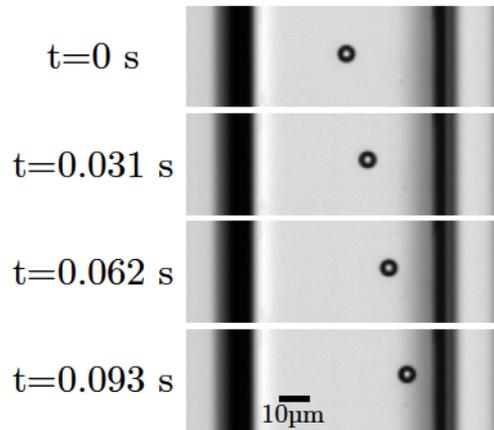


FIGURE 6.14 – Déplacement d'une bille de polystyrène dans le capillaire sous l'action d'un seul faisceau laser de puissance au boîtier $P_{boitier} = 1200 \text{ mW}$. Seule la fibre de gauche émet un faisceau laser ici.

La bille, immergée dans l'eau, est alors soumise à la force optique et à la force de Stokes :

$$\begin{aligned} m\vec{a} &= \vec{F}_{scatt} + \vec{F}_{Stokes} \\ m\ddot{z} &= F_{scatt}(z, P) - \frac{6\pi\eta R_0 \dot{z}}{\xi(z)} \end{aligned} \quad (6.21)$$

où $m = \frac{4}{3}\pi R_0^3 \rho_{PS}$ est la masse de la bille de polystyrène, $\eta = 1 \text{ mPa.s}$ est la viscosité de l'eau et $\xi(z) = 1 - \frac{9}{64} \frac{R_0}{z} + \frac{1}{8} \left(\frac{R_0}{z}\right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{R_0}{z}\right)^4 - \frac{1}{13} \left(\frac{R_0}{z}\right)^5$ est un facteur correctif de la force de Stokes prenant en compte les effets de parois [146].

La force optique exercée sur la bille est directement proportionnelle à la puissance P du faisceau incident et s'exprime par [147] :

$$F_{scatt} = \frac{4Pn_1}{c} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \left(\frac{R_0}{\omega(z)}\right)^2 \exp\left(-2\frac{R_0^2 \sin^2 \theta}{\omega^2(z)}\right) H(\theta) d\theta \quad (6.22)$$

avec

$$H(\theta) = \cos \alpha \sin \theta \left[\cos(\alpha - \theta) + R(\alpha) \cos(\alpha + \theta) - T^2(\alpha) \frac{\cos(\alpha + \theta - 2\beta) + R(\alpha) \cos(\alpha + \theta)}{1 + R^2(\alpha) + 2R(\alpha) \cos 2\beta} \right] \quad (6.23)$$

En utilisant un module du logiciel ImageJ détectant la bille, nous pouvons réaliser un suivi de celle-ci au cours du temps et ainsi connaître sa trajectoire expérimentale. À l'aide d'un programme développé sous Matlab® et de l'expression analytique 6.22 de la force optique subie par un objet sphérique, nous pouvons reconstruire numériquement la trajectoire de la bille par résolution de l'équation de son mouvement (en utilisant comme conditions initiales les paramètres expérimentaux), comme nous le présentons sur la figure 6.15a. En comparant les trajectoires numériques obtenues en itérant successivement sur les valeurs de puissances à la trajectoire expérimentale de la bille, nous en déduisons la puissance réelle émise par la fibre optique. Un exemple de la détermination de la puissance émise par une fibre optique est présenté sur la figure 6.15a pour une puissance au boîtier $P_{\text{boîtier}} = 1200\text{mW}$. Nous trouvons $P_{\text{fibre}} = 425\text{mW}$ (soit $\sim 1/3P_{\text{boîtier}}$). Remarquons que cette valeur est attendue car le faisceau laser incident est tout d'abord séparé en 2 par le cube séparateur et est ensuite couplé dans les fibres avec un taux de couplage $C \sim 70\%$. Nous pouvons alors estimer la puissance émise par chaque fibre optique : $P_{\text{fibre}} \sim \frac{P_{\text{boîtier}}}{2} \times 0.7 \sim 0.35 \times P_{\text{boîtier}}$.

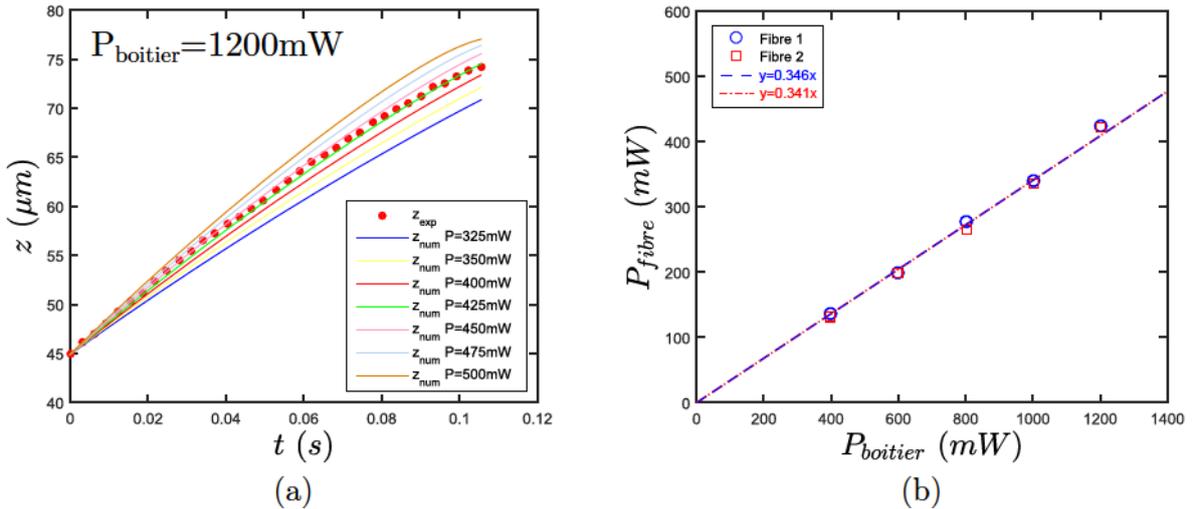


FIGURE 6.15 – (a) Détermination de la puissance en sortie de la fibre 1 (de gauche) pour une puissance boîtier $P_{\text{boîtier}} = 1200\text{mW}$. (b) Évolution de la puissance laser émise par chaque fibre en fonction de la puissance au boîtier.

En effectuant cette démarche pour chaque fibre optique, nous nous assurons que la

puissance est équitablement répartie dans chaque fibre lorsque la bille est piégée au centre du capillaire (voir figure 6.15b). De plus, nous avons vérifié la linéarité du couplage du faisceau laser dans nos fibres optiques en déterminant la puissance en sortie de fibre pour différentes puissances laser au boîtier, donc en entrée de chaque fibre optique. L'évolution de la puissance en sortie de fibre en fonction de la puissance laser incidente est présentée sur la figure 6.15b. Nous obtenons alors une puissance émise pour chaque fibre valant environ 35% de la puissance boîtier ce qui correspond donc à un couplage $C \sim 70\%$ du faisceau dans chaque fibre.

Afin de réduire le temps de calcul dans cette démarche de calibration, nous avons privilégié la formule analytique de la force optique plutôt que l'intégration du profil des contraintes optiques, qui donnerait le même résultat. Nous considérons bien évidemment la propagation du faisceau laser dans le dispositif microfluidique avec capillaire (voir expressions 6.10) pour le calcul de la force optique.

Cette étape de calibration est donc nécessaire afin de connaître précisément la puissance dans le double piège optique, et elle est réalisée avant chaque expérience de piégeage et de déformation d'objets mous que nous allons présenter dans le chapitre suivant.

Chapitre 7

Piégeage et déformation d'objets uniques dans un double piège optique

Dans le chapitre précédent, nous avons décrit le double piège optique que nous avons développé au cours de cette étude et qui permet à la fois de piéger et déformer des objets uniques de géométrie sphérique. Rappelons que celui-ci est composé de deux faisceaux laser divergents contra-propageants, de forte puissance (jusqu'à $\sim 3\text{W}$ au total) et de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532\text{nm}$ (issu d'un laser $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ doublé en fréquence). Dans toutes les expériences décrites dans ce chapitre, nous considérons le dispositif microfluidique avec capillaire précédemment décrit (voir chapitre 6).

L'objectif de ce chapitre est d'étudier la déformation de systèmes modèles dans ce double piège optique afin de mieux comprendre l'action des lasers et de la pression de radiation sur des interfaces sphériques.

Pour commencer, nous aborderons la question du choix du système fluide expérimental, celui-ci devant répondre à certains critères. Puis nous décrirons plus particulièrement un système modèle pour lequel nous étudierons ensuite les différentes morphologies observées selon la puissance laser appliquée. Un des enjeux de cette étude est de savoir si le double piège optique développé au cours de cette étude permet, comme pour les interfaces planes, de caractériser les propriétés mécaniques de systèmes mous. Un autre enjeu est également de savoir s'il est possible d'atteindre des régimes non-linéaires de déformation en géométrie sphérique, notre dispositif permettant l'utilisation de fortes puissances.

7.1 Choix du système expérimental

Le chapitre précédent a démontré que le calcul des contraintes optiques en géométrie sphérique était très différent du calcul standard en géométrie plane. Le but étant, à terme, d'utiliser le double piège optique développé dans cette étude pour la caractérisation rhéo-

logique de systèmes complexes, il est donc essentiel de tester les résultats que nous avons établi au chapitre précédent en étudiant la déformation d'un système expérimental modèle.

Un tel système doit vérifier certaines conditions. Afin de pouvoir piéger un objet sur l'axe d'un faisceau laser, celui-ci doit posséder un indice de réfraction supérieur à celui du milieu dans lequel il est immergé [5]. Comme nous l'avons déjà évoqué à plusieurs reprises, les forces optiques mises en jeu sont extrêmement faibles ce qui nécessite de plus d'utiliser un système très déformable. Enfin, pour ne considérer que les effets de pression de radiation optique, nous recherchons un système optiquement transparent à la longueur d'onde utilisée, et dont la taille peut être réduite à l'échelle micrométrique.

Nous présentons ci-dessous deux systèmes expérimentaux modèles potentiels pour effectuer une telle étude.

7.1.1 Gouttes de très faible tension interfaciale

Un premier système simple répondant à ces différents critères est une gouttelette d'un fluide A dans un fluide B (huile dans eau par exemple). Cependant, bien qu'il soit assez simple de produire des gouttelettes de taille contrôlée, par exemple à l'aide d'un *coflow* où un fluide B s'écoule autour d'un fluide A , il devient en revanche bien plus complexe voire impossible de générer celles-ci dans le régime de très basse tension interfaciale. En effet, nous avons montré au chapitre 4 que des tensions interfaciales de l'ordre de $\gamma = 10^{-6}$ N/m étaient nécessaires pour observer des déformations de l'ordre d'une dizaine de micromètres sur des interfaces planes.

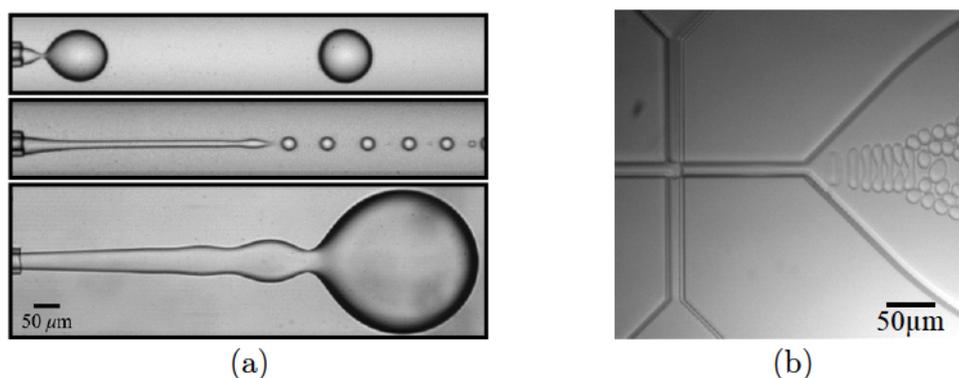


FIGURE 7.1 – (a) *Illustration de la transition entre formation de gouttes et jet avec un coflow. En augmentant le débit d'injection du fluide A, aucune goutte ne se forme. Issue de [148].* (b) *Génération de gouttes d'heptane dans l'eau de faible tension interfaciale avec un flow focusing.*

Utada *et al.* ont ainsi montré qu'il existe une transition entre un régime où des gouttes de A dans B sont formées et un régime pour lequel le liquide A s'écoule dans le liquide B

sous la forme d’un jet ne se brisant pas, comme nous le montrons sur la figure 7.1a issue de [148]. Ce second régime apparaît notamment lorsque les effets capillaires deviennent trop faibles pour compenser les effets inertiels, ce qui se produit lorsque la tension interfaciale entre les deux fluides devient très faible.

Une première stratégie afin d’obtenir des gouttes de très faible tension interfaciale serait de récupérer celles produites lors de la déstabilisation d’une interface liquide plane par pression de radiation optique (voir chapitre 4). Cela nous permettrait ainsi de travailler avec des systèmes fluides de même nature que ceux utilisés précédemment dans cette étude, mais cette fois en géométrie sphérique. Cependant, cette démarche n’est pas réalisable compte tenu des contraintes expérimentales du dispositif de déformations d’interfaces planes par laser. De plus, l’émission de gouttes par la déstabilisation d’une interface liquide n’apparaît pas pour des systèmes transparents mais uniquement en présence de turbidité dans l’échantillon.

L’idéal serait alors de générer des gouttelettes à partir de nos phases transparentes de Winsor préparées avec de l’heptane (voir chapitre 3), ce qui n’est pas possible d’après les raisons évoquées ci-dessus [148].

Récemment, Bolognesi *et al.* ont proposé une méthode permettant de générer des gouttelettes monodisperses d’heptane dans l’eau, de nature très similaire aux phases de Winsor, et donc de très faible tension interfaciale ($\gamma \sim 1\mu\text{N/m}$) [149]. Ces gouttelettes micrométriques sont obtenues à l’aide d’une puce microfluidique en verre comportant une jonction appelée *flow focusing* au niveau de laquelle une solution saline contenant du surfactant (de l’AOT) vient cisailer de part et d’autre une solution d’heptane pur (voir figure 7.1b). Le choix des débits d’injection ainsi que le fort confinement au niveau de la jonction permettent alors au temps caractéristique de génération de la goutte de devenir inférieur au temps de diffusion caractéristique du surfactant à la surface de cette goutte ($t_d \sim 1\text{ms}$ typiquement). Après leur formation au niveau de la jonction, les gouttelettes traversent un canal très étroit ($14 \times 17\mu\text{m}$) et arrivent ensuite dans un canal bien plus large ($500\mu\text{m}$) comme nous le voyons sur la figure 7.1b, où le transport diffusif et convectif de molécules de surfactant à l’interface permet à la tension interfaciale dynamique γ_d d’atteindre des valeurs stationnaires ultra-basses. Afin de produire des gouttelettes de très faible tension interfaciale, il faut alors diminuer la tension à l’équilibre γ_e , celle-ci étant inférieure à γ_d , ce qui se fait par un contrôle de la salinité et de la température. Cette méthode nécessite une grande propreté des solutions, un contrôle extrêmement précis des débits d’injections et de la salinité, ce qui peut s’avérer assez complexe à mettre en œuvre. De plus, l’étude de Bolognesi *et al.* montre également que le transport de ces gouttes de très faibles tensions de surface n’est pas aisé et nécessite un dispositif spécifique [149].

La difficulté expérimentale que nous avons rencontrée pour générer des gouttes de très

faible tension interfaciale avec la méthode de Bolognesi *et al.* nous a donc poussé à envisager un autre système déformable comme nous allons le voir dans la partie suivante.

7.1.2 Vésicules unilamellaires géantes

Les vésicules unilamellaires sont des systèmes synthétiques formés d'une bicouche de lipides et répondent tout à fait aux critères recherchés pour notre système expérimental. Elles possèdent en effet une forme sphéroïdale, de diamètre compris entre 5 et 100 μm , et les propriétés mécaniques de celles-ci peuvent être contrôlées par leur composition, ce qui permet alors d'obtenir des systèmes très déformables.

Les vésicules unilamellaires sont généralement synthétisées à partir d'une solution aqueuse dans laquelle sont dispersés des phospholipides composés de deux chaînes carbonées, d'une unité de glycérol, d'un groupe phosphate et d'une tête hydrophile. La nature amphiphile des phospholipides conduit alors à la formation d'une bicouche de très faible épaisseur ($\sim 4 - 6\text{nm}$), dans laquelle les têtes hydrophiles se trouvent en contact avec la solution aqueuse. La conformation résultante de ces vésicules (ou liposomes) est alors une structure sphérique fermée (voir figure 7.2) dans laquelle est encapsulée la solution aqueuse.

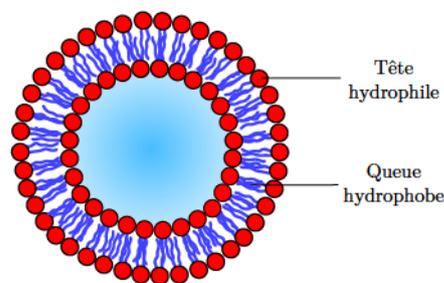


FIGURE 7.2 – Structure d'une vésicule unilamellaire de phospholipides

Afin de créer un contraste d'indice optique entre les milieux interne et externe aux vésicules, ce qui est nécessaire au piégeage et à la déformation optique, celles-ci sont ensuite transférées dans une solution aqueuse d'indice de réfraction plus faible que le milieu interne. Les concentrations en soluté de chaque milieu (interne et externe aux vésicules) doivent alors être adaptées afin d'obtenir un contraste d'indices optiques suffisant pour permettre la déformation par laser, tout en conservant un caractère déformable de l'objet. Il faut alors que la pression osmotique à l'extérieur des vésicules reste légèrement supérieure à la pression osmotique interne, pour ne pas "tendre" la membrane des vésicules.

Ajoutons que les vésicules représentent un système modèle très attrayant pour la

compréhension des propriétés mécaniques des membranes [18, 150] mais également afin d'appréhender les mécanismes fondamentaux dans les cellules biologiques [151], puisque les déformations de la membrane lipidique contrôlent les aspects essentiels de la fonction cellulaire tels que leur déplacement et leur division.

La relative simplicité à synthétiser des vésicules de phospholipides ainsi que la possibilité de faire varier leurs propriétés mécaniques et optiques à partir de leur composition nous a donc amené à choisir ce système fluide pour les expériences de déformations dans notre double piège optique. Dans la prochaine partie, nous allons décrire la préparation des vésicules utilisées.

7.1.3 Préparation de notre système fluide

Il existe différentes méthodes ainsi qu'une très grande variété de lipides permettant de générer des vésicules unilamellaires. Dans cette partie, nous allons décrire la préparation des vésicules utilisées pour nos expériences de déformations optiques.

Toutes nos vésicules unilamellaires ont été préparées par électroformation [152, 153] de phospholipides POPC (Palmitoyl-2-Oléoyl-sn-glycéro-3-PhosphoCholine) selon la méthode décrite par exemple dans [154].

Les phospholipides sont tout d'abord dissous dans du chloroforme puis étalés à l'aide d'une seringue sur les surfaces électriquement conductrices de deux lames de verre à revêtement ITO (pour *Indium Tin Oxide*). Après séchage sous vide durant une nuit, les films phospholipidiques résultants sont ensuite réhydratés dans une solution obtenue par dissolution de sucrose dans une solution tampon d'Hépes assurant un pH 7 ($c_{Hepes} = 20\text{mM}$). Cette solution est contenue dans une chambre d'électroformation formée des deux lames de verre collées avec de la graisse de part et d'autre d'un cadre rectangulaire de téflon d'épaisseur millimétrique. Afin d'assurer l'étanchéité de cette chambre, celle-ci est scellée avec du parafilm et des pinces sont ajoutées afin de maintenir les lames. Cette chambre est ensuite reliée à l'aide de pinces crocodiles à un générateur de fonctions (GBF) fournissant un courant alternatif de fréquence 10 Hz (voir figure 7.3). L'électroformation de nos vésicules est finalement réalisée en appliquant une tension initiale crête à crête de 0.8V et en augmentant de 0.4V toutes les 15min jusqu'à atteindre 2.8V.

Afin d'obtenir un contraste d'indices optiques entre les milieux interne et externe, les vésicules contenant du sucrose sont ensuite transférées dans une solution de glucose contenant elle aussi de l'Hépes ($c_{Hepes} = 20\text{mM}$). Afin de varier ce contraste, nous avons utilisé deux concentrations différentes en sucrose et en glucose (500mOsm et 1000mOsm, dans notre cas 1mOsm=1mM), les indices de réfraction de chaque solution variant avec la



FIGURE 7.3 – Photographie du dispositif utilisé pour l'électroformation de vésicules de phospholipides.

concentration en soluté. Les indices optiques de chaque solution, mesurés à l'aide d'un réfractomètre d'Abbe, sont $n_{glucose} = 1.346$ et $n_{sucrose} = 1.355$ à 500mOsm et $n_{glucose} = 1.367$ et $n_{sucrose} = 1.372$ à 1000mOsm.

Nous remarquons que le contraste d'indices optiques est très faible, de sorte que les vésicules ne peuvent pas être distinguées du milieu environnant par observation en microscopie classique. Afin de les visualiser, nous avons donc utilisé un objectif de microscope à contraste de phase, conjugué à un anneau de phase.

Le faible contraste d'indices optiques entraîne également une très faible amplitude des forces optiques. Nous nous sommes alors assurés de plus que la concentration osmotique de la solution externe de glucose soit légèrement supérieure à la concentration osmotique interne dans le but d'obtenir des vésicules très déformables.

Bien qu'il soit tentant de vouloir utiliser des concentrations osmotiques élevées afin d'obtenir un contraste d'indices optiques fort, cela se révèle assez défavorable à l'obtention de vésicules sphériques. Une pression osmotique interne trop élevée entraîne en effet une déformation de l'interface en une structure allongée, en absence de champ laser. De plus, l'utilisation de fortes concentrations osmotiques entraînent une modification des propriétés mécaniques des vésicules comme suggéré dans [154, 155, 156].

7.2 Effet du chauffage sur la déformation de vésicules

Avant de s'intéresser aux déformations obtenues dans notre double piège optique, nous allons tout d'abord établir un bref état de l'art de la déformation optique de vésicules dans un tel dispositif, en présence de chauffage.

Nous allons voir ici que le choix de la longueur d'onde excitatrice dans le double piège optique influence fortement la déformation induite sur une vésicule, compte tenu de l'absorption de la lumière incidente par son milieu externe ou interne.

Nous présentons ici la déformation de vésicules unilamellaires géantes (constituées

d'un mélange de phospholipides EPC) induite dans un double piège optique pour une longueur d'onde $\lambda_0 = 1064\text{nm}$ obtenue par Delabre *et al.* [157]. Cette longueur d'onde, courante dans le domaine du piégeage optique, permet d'obtenir facilement des faisceaux laser de forte puissance issus de fibres optiques monomodes mais induit en revanche une élévation de température non négligeable valant $\Delta T \simeq 16^\circ\text{C}/\text{W}$ [158]. Ainsi sous l'effet du chauffage, lorsqu'une vésicule piégée est soumise à une forte puissance incidente, la déformation optique de celle-ci vers une forme d'ellipsoïde allongée n'est pas stationnaire. La déformation augmente rapidement après l'application de la puissance d'étirement avant de diminuer durant cette même phase comme nous pouvons le voir sur la figure 7.4a issue de [157]. Tout se passe alors comme si la vésicule devenait de plus en plus rigide au cours du temps, ce qui suggère donc une réorganisation des phospholipides sous l'effet du chauffage.

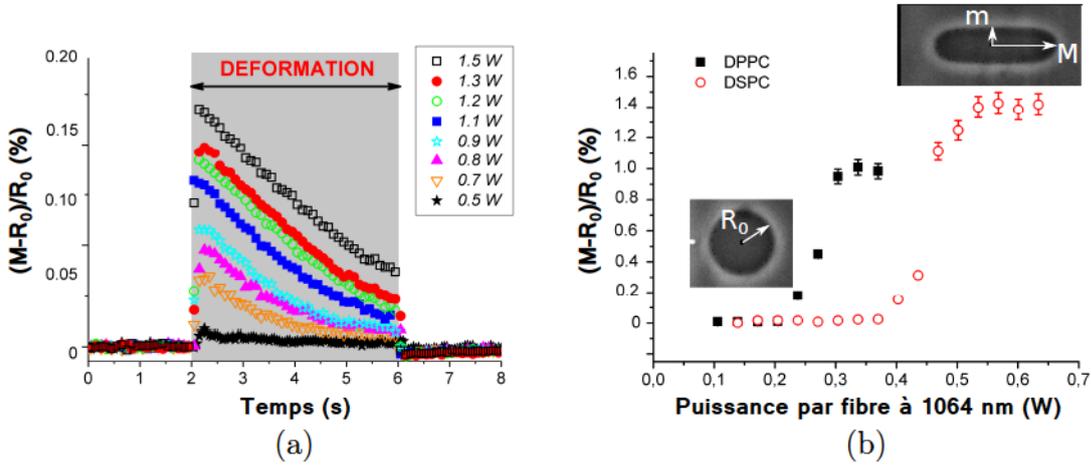


FIGURE 7.4 – (a) Évolution temporelle de la déformation longitudinale de vésicules de phospholipides pour différentes puissances laser à 1064nm. Voir (b) pour la définition des grandeurs mesurées. (b) Évolution de la déformation longitudinale de vésicules de phospholipides DPPC et DSPC en fonction de la puissance laser à 1064nm appliquée. Une élévation de température constante est de plus assurée par un faisceau laser à 1480nm de puissance $P = 8 \text{ mW}$ and $P = 11 \text{ mW}$ pour les vésicules DPPC et DSPC respectivement. Issues de [157]

Dans cette même étude, l'effet du chauffage sur les déformations de vésicules dans ce double piège optique a d'ailleurs été clairement identifié en couplant à une des deux fibres optiques un faisceau de longueur d'onde $\lambda_0 = 1480\text{nm}$. Cette longueur d'onde est fortement absorbée par les vésicules et induit alors une élévation de température estimée à $\Delta T \simeq 2070 - 2700^\circ\text{C}/\text{W}$. Il est donc possible avec un laser à 1480nm d'induire un changement de température important en appliquant une puissance constante très faible ($\Delta T = 20^\circ\text{C}$ pour une puissance de 10mW). Ainsi en utilisant des vésicules de phospholipides DPPC et DSPC, Delabre *et al.* ont montré que le chauffage par laser peut induire une transition de phase des phospholipides et donc une réorganisation de ces derniers pendant

la phase d'étirement. En effet, en augmentant la puissance des faisceaux laser à 1064nm il est alors possible d'induire, en plus de la déformation, un chauffage des vésicules qui permet de dépasser la température de transition de phase gel/liquide des phospholipides ($T_m^{DPPC} = 41.6^\circ\text{C}$ et $T_m^{DSPC} = 55^\circ\text{C}$). Comme nous le constatons sur la figure 7.4b, la vésicule se déforme peu aux faibles puissances laser ($T < T_m$) alors que celle-ci s'allonge fortement et adopte une forme de "cigare" aux fortes puissances ($T > T_m$).

Le chauffage des vésicules peut alors être fortement réduit en utilisant une autre longueur d'onde excitatrice. Par exemple en utilisant des faisceaux laser à $\lambda_0 = 808\text{nm}$ [154, 157, 159], l'élévation de température devient faible ($\Delta T \simeq 2^\circ\text{C/W}$). Dans notre cas ($\lambda_0 = 532\text{nm}$), les phospholipides absorbent peu et le volume d'absorption est de taille moléculaire. Une élévation de température par absorption serait alors principalement liée à l'eau. Or l'eau absorbe très peu la lumière à notre longueur d'onde, le chauffage est donc négligeable dans notre double piège optique.

7.3 Déformation de vésicules sous faible excitation laser

Nous allons maintenant présenter les déformations obtenues dans notre double piège optique. Pour nos expériences de déformations par laser, nous écoupons les vésicules, obtenues par le procédé d'électroformation décrit précédemment, dans le capillaire et nous considérons uniquement les vésicules les plus déformables. Celles-ci se repèrent alors facilement par la présence de fluctuations importantes de leur membrane, observables au microscope. Lorsqu'une vésicule se révèle être une bonne candidate, celle-ci est alors amenée jusqu'à la zone de piégeage (entre les deux faisceaux laser). Si cette dernière peut être piégée à faible puissance, nous procédons alors à sa déformation optique, ce qui sera décrit dans la suite de ce chapitre.

Toutes les expériences présentées dans ce chapitre ont été réalisées avec une distance fibre/capillaire constante valant $128\mu\text{m}$ (soit une distance fibre à fibre $d = 416\mu\text{m}$). La taille de chaque faisceau est donc constante au niveau du centre du capillaire où est piégée la vésicule et vaut $\omega \simeq 15\mu\text{m}$.

7.3.1 Régime linéaire de déformation

Comme nous l'avons prouvé au chapitre 2, et montré expérimentalement pour des interfaces liquides planes au chapitre 4, la déformation d'une interface molle induite par pression de radiation optique est toujours orientée vers le milieu d'indice optique le plus faible. Ainsi, lorsqu'une vésicule de phospholipides est soumise à une faible excitation laser dans le double piège optique, celle-ci est alors étirée de manière symétrique dans la direction des faisceaux, en plus d'être piégée. Une vésicule initialement sphérique de rayon

R_0 adopte alors une forme d'ellipsoïde de révolution caractérisée par son demi grand-axe M et son demi petit-axe m . Un exemple de déformation induite à différentes puissances est présentée en figure 7.5 pour une vésicule de rayon initial $R_0 = 8.78\mu\text{m}$ et une concentration osmotique de 500mOsm . Comme nous le constatons sur cette figure, l'amplitude de la déformation est d'autant plus importante que la puissance appliquée est élevée.

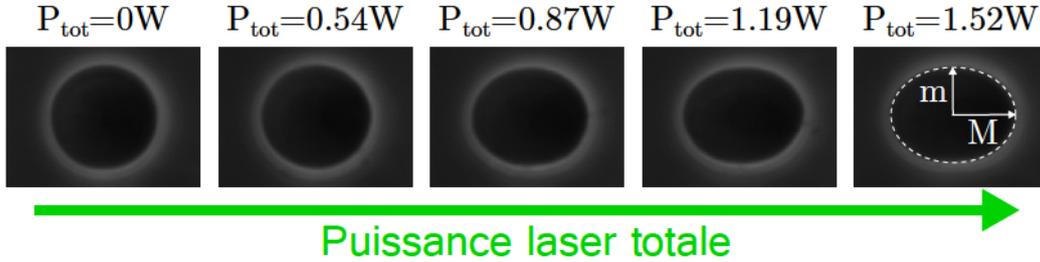


FIGURE 7.5 – Déformation sans contact d'une vésicule de phospholipides (POPC à 500mOsm) induites à différentes puissances laser dans un double piège optique. Le rayon initial de la vésicule est $R_0 = 8.78\mu\text{m}$.

En mesurant le taux de déformation longitudinale $\frac{\Delta M}{R_0} = \frac{M-R_0}{R_0}$ au cours du temps (voir figure 7.6), nous montrons qu'une vésicule répond très rapidement à la contrainte optique appliquée et que cette déformation est stationnaire, contrairement à ce qui est observé pour des longueurs d'ondes excitatrices λ_0 de 1064nm et 1480nm , pour lesquelles l'absorption importante peut induire des transitions de phases. Ce résultat témoigne de l'absence d'un effet de chauffage mesurable des vésicules pour la longueur d'onde $\lambda_0 = 532\text{nm}$ utilisée ici, comme anticipé précédemment. Ainsi pour une puissance laser donnée, nous induisons une déformation uniquement pilotée par la pression de radiation. Ajoutons que la déformation induite optiquement est réversible : en arrêtant l'excitation laser, la vésicule relaxe très rapidement vers sa forme sphérique initiale ($\Delta M/R_0 = 0$) comme nous le voyons sur la figure 7.6, ce qui témoigne de l'élasticité de ce système modèle.

Afin de caractériser la déformation de cette vésicule induite dans notre double piège optique, nous avons donc mesuré son taux de déformation longitudinale $\frac{\Delta M}{R_0}$ et transversale $\frac{\Delta m}{R_0}$ en fonction de la puissance incidente totale (i.e. pour les deux faisceaux). Nous présentons sur la figure 7.7a les résultats de mesures de ces taux de déformations correspondant à la séquence d'images présentée en figure 7.5. Tout comme dans le cas d'une interface plane, nous mettons ici en évidence l'existence d'un régime linéaire de déformation stationnaire des vésicules avec la puissance laser appliquée. Ainsi pour de faibles excitations laser, la dimension longitudinale d'une vésicule piégée augmente de manière linéaire avec la puissance laser. Par conservation du volume de la vésicule, sa dimension transversale décroît linéairement avec la puissance laser.

Notons qu'aux puissances laser les plus faibles, la vésicule ne semble pas déformée ($\Delta M/R_0 \simeq 0$ et $\Delta m/R_0 \simeq 0$). Une cause possible de ce résultat est la précision de la détection de

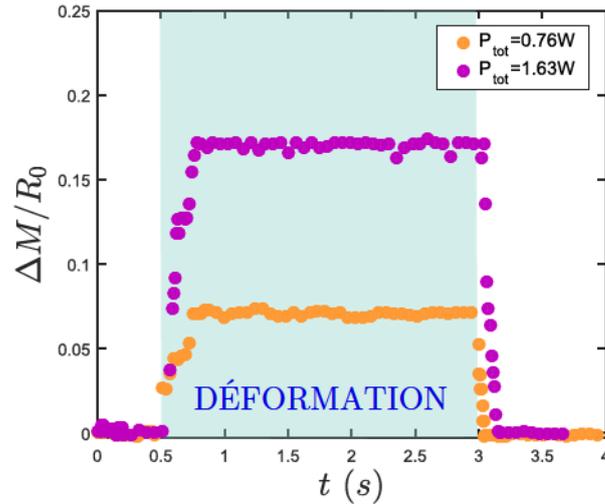


FIGURE 7.6 – Évolution dynamique du taux de déformation longitudinale $\Delta M/R_0$ d'une vésicule (POPC à 500mOsm) durant une expérience de déformation optique. La zone bleue correspond à la période d'application de la puissance laser et donc de la déformation.

l'interface de la vésicule, qui ne permet pas de mesurer de très faibles déformations. Nous ne pouvons en effet pas détecter une déformation inférieure à 1 pixel soit $0.2\mu\text{m}$ environ avec l'objectif de microscope utilisé. Cela signifie donc que la plus petite déformation détectable pour cette vésicule est $\Delta M/R_0 \sim 0.2/8.78 \sim 2\%$, ce qui semble correspondre aux résultats de la figure 7.7a.

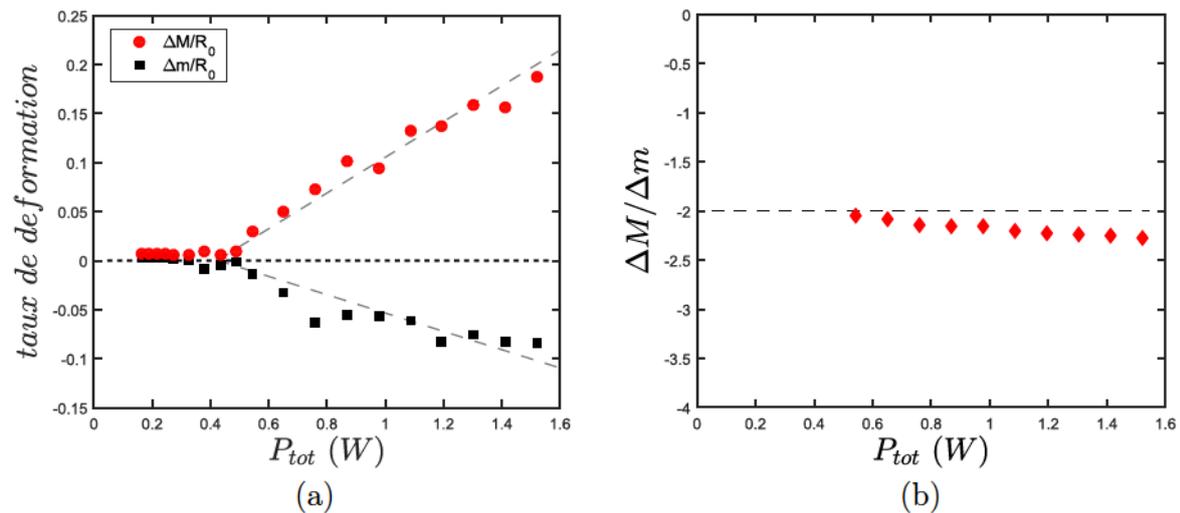


FIGURE 7.7 – (a) Évolution du taux de déformation stationnaire longitudinale et transversale en fonction de la puissance incidente totale. (b) Évolution du rapport des taux de déformation en fonction de la puissance incidente totale.

Nous pouvons d'ailleurs vérifier expérimentalement la conservation du volume dans ce régime linéaire de déformation. Le volume d'une vésicule de forme ellipsoïdale est donnée

par :

$$V_{ves} = \frac{4}{3}\pi M m^2$$

Ainsi la conservation du volume de la vésicule se traduit par :

$$\Delta V_{ves} = \frac{4}{3}\pi (m^2 \Delta M + 2M m \Delta m) = 0$$

soit

$$\frac{\Delta M}{\Delta m} = -2 \frac{M}{m} \quad (7.1)$$

Nous vérifions ainsi ce comportement en représentant le rapport $\frac{\Delta M}{\Delta m}$ en fonction de la puissance sur la figure 7.7b. La dimension longitudinale M augmentant plus rapidement que la dimension transversale m ne diminue avec la puissance (voir figure 7.7a), nous observons donc une décroissance du rapport $\frac{\Delta M}{\Delta m}$ avec la puissance, restant toujours proche de -2 , en accord avec l'équation 7.1. Ainsi, nous montrons donc que le volume d'une vésicule est conservé dans le régime linéaire de déformation, pour lequel les taux de déformations induites sont typiquement de quelques pourcents par rapport à la forme initiale de la vésicule.

L'existence de ce régime linéaire de déformation dans un double piège optique a également été mis en évidence par Solmaz *et al.* pour des vésicules unilamellaires de même nature [154, 159] et plus récemment par Delabre *et al.* [157] pour des vésicules de nature phospholipidique différente. Dans ces expériences, le double piège optique possède une longueur d'onde excitatrice $\lambda_0 = 808\text{nm}$, créant une faible élévation de température ($\Delta T \simeq 2^\circ\text{C/W}$).

7.3.2 Description théorique de la déformation optique

Afin de rendre compte des comportements observés, nous allons décrire théoriquement dans cette partie la déformation d'une vésicule dans un double piège optique dans le cadre du régime linéaire, en se basant sur les raisonnements proposés dans [157, 160, 161].

Modèle de la goutte liquide

Dans une première approche, une vésicule de phospholipides peut être considérée comme une goutte liquide de très faible tension interfaciale, constante et valant Σ_0 . La déformation stationnaire de cette vésicule dans un double piège optique résulte de l'équilibre entre la pression de radiation optique, la différence entre la pression interne et externe à la vésicule, et la pression de Laplace. Remarquons ici que la gravité n'intervient pas, ce qui se justifie par la géométrie du double piège optique.

D'après la loi de Laplace, la déformation locale de cette vésicule à un angle θ s'écrit

donc :

$$\Pi_{int} - \Pi_{ext} + \sigma(\theta) = \Sigma_0 C(\theta) \quad (7.2)$$

où Π_{int} et Π_{ext} sont respectivement la pression interne et externe à la vésicule, $\sigma(\theta)$ est la contrainte optique locale, Σ_0 est la tension de la vésicule et $C(\theta)$ est la courbure locale.

En soustrayant l'équation 7.2 appliquée à un angle θ quelconque et à $\theta = \pi/2$, il est alors possible d'éliminer les pressions interne et externe, ce qui donne après intégration :

$$\int_0^{\pi/2} (\sigma(\theta) - \sigma(\pi/2)) dS = \int_0^{\pi/2} \Sigma_0 (C(\theta) - C(\pi/2)) dS \quad (7.3)$$

Dans cette équation, la contrainte optique $\sigma(\theta)$ exercée sur la vésicule peut être calculée numériquement pour tout angle θ à l'aide du modèle décrit au chapitre précédent, comme nous le montrons sur la figure 7.8. Sur cette figure, nous considérons la vésicule étudiée dans le régime linéaire (POPC à 500mOsm) de rayon initial $R_0 = 8.78\mu\text{m}$ et les indices optiques correspondants $n_1 = n_{glucose} = 1.346$ et $n_2 = n_{sucrose} = 1.355$. Nous avons choisi dans cet exemple une puissance totale $P_{tot} = 1.09\text{W}$, ce qui est une valeur expérimentale typique du régime linéaire de déformation (voir figure 7.7a).

Nous remarquons ici que les contraintes optiques sont très faibles, ce à quoi nous pouvions nous attendre compte tenu du contraste d'indices optiques obtenu. La contrainte optique maximale vaut par exemple $\sigma_0 = 0.098\text{ Pa}$.

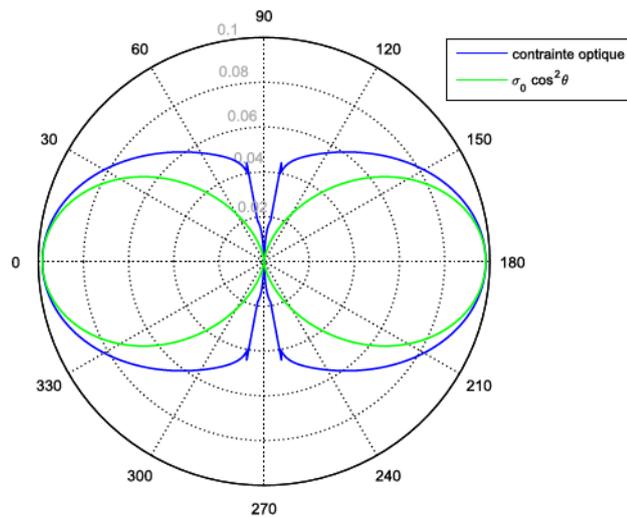


FIGURE 7.8 – Profil des contraintes optiques (en Pa) exercées sur un objet sphérique dans notre double piège optique. Les caractéristiques de l'objet, immergé dans un milieu d'indice $n_1 = n_{glucose} = 1.346$, correspondent à celles de la vésicule étudiée soit $R_0 = 8.78\mu\text{m}$ et $n_2 = n_{sucrose} = 1.355$. La puissance laser totale émise par les deux fibres est $P_{tot} = 1.09\text{W}$.

La conservation du volume lors de la déformation d'une vésicule en un ellipsoïde de révolution de dimension longitudinale $2M$ et transversale $2m$ implique (au premier ordre) :

$$\begin{aligned} m &= R_0(1 - \Delta M/(2R_0)) \\ M &= R_0(1 + \Delta M/(2R_0)) \end{aligned} \quad (7.4)$$

La courbure locale $C(\theta)$ d'un ellipsoïde à un angle θ étant donnée par [157] :

$$C(\theta) = \frac{M[m^2 + M^2 + (m^2 - M^2) \cos^2 \theta]}{m[M^2 + (m^2 - M^2) \cos^2 \theta]^{3/2}} \quad (7.5)$$

le terme de droite de l'équation 7.3, correspondant à la force capillaire, vaut alors en utilisant 7.4 :

$$\int_0^{\pi/2} \Sigma_0 (C(\theta) - C(\pi/2)) dS = 3\pi R_0 \Sigma_0 \left(\frac{\Delta M}{R_0} \right) \quad (7.6)$$

Afin de déterminer le terme de gauche de l'équation 7.3, correspondant à la force optique exercée sur la vésicule, nous utilisons une approximation du profil des contraintes optiques de la forme $\sigma = \sigma_0 \cos^2 \theta$ [162] (voir figure 7.8), ce qui conduit alors à [157] :

$$\int_0^{\pi/2} (\sigma(\theta) - \sigma(\pi/2)) dS = \frac{\pi R_0^2 \sigma_0}{2} \quad (7.7)$$

D'après l'équation 7.3, nous montrons donc que la déformation d'une vésicule pour de faibles excitations optiques obéit à :

$$\frac{\Delta M}{R_0} = \frac{\sigma_0 R_0}{6\Sigma_0} \quad (7.8)$$

Nous venons ainsi de prouver avec ce modèle simple l'existence du régime linéaire de déformation d'une vésicule avec la contrainte optique maximale appliquée σ_0 (qui est proportionnelle à la puissance laser).

Nous voyons qu'il est alors possible d'estimer la tension Σ_0 , connaissant la contrainte optique maximale σ_0 et le taux de déformation longitudinale $\frac{\Delta M}{R_0}$. Dans le cas de la vésicule de rayon initial $R_0 = 8.78\mu\text{m}$ considérée jusqu'à présent, la contrainte optique maximale vaut $\sigma_0 = 0.098\text{Pa}$ pour un taux de déformation correspondant $\frac{\Delta M}{R_0} = 13.3\%$. Nous estimons alors la tension de cette vésicule à $\Sigma_0 \sim 1\mu\text{N/m}$.

La tension d'une vésicule déterminée avec le modèle de la goutte liquide est donc très faible. Cependant cette description minimale ne prend pas en compte les fluctuations de la vésicule, caractérisées par un module de courbure, ainsi que la dépendance possible de la tension de la vésicule avec la contrainte appliquée. Ainsi une description prenant en compte ces fluctuations est nécessaire.

Description plus réaliste pour une vésicule

Dans le cas d'une vésicule déformable dont la membrane est fluctuante, le rayon de celle-ci peut être décomposé en harmoniques sphériques [160, 163] :

$$R(\theta, \phi) = R_0 \left(1 + \sum_{l \geq 0} \sum_{m=-l}^l u_{lm} Y_{lm}(\theta, \phi) \right) \quad (7.9)$$

où $Y_{lm}(\theta, \phi)$ sont les fonctions harmoniques sphériques normalisées et u_{lm} leurs amplitudes associées.

D'après la conservation du volume, le rayon R_0 de la vésicule est relié à V_{ves} par $V_{ves} = \frac{4}{3}\pi R_0^3$. L'aire totale A de la vésicule est alors supposée fixe et peut être exprimée par $A = (4\pi + \Delta)R_0^2$, où l'aire excédentaire sans dimension Δ est liée à la différence entre l'aire apparente et l'aire réelle.

Lorsqu'une vésicule est déformée dans le double piège optique, la pression de radiation déplie en quelques sortes les fluctuations microscopiques de la membrane de la vésicule, ce qui conduit à son allongement vers une forme ellipsoïdale. En ce sens, pour une faible excitation optique, la membrane de la vésicule n'est pas étirée à proprement parler.

La forme de la vésicule déformée optiquement à l'état stationnaire résulte alors de la minimisation de son énergie libre F qui se décompose en trois termes : une énergie de courbure F_κ liée aux fluctuations de la membrane, une énergie de surface F_Σ liée à la variation d'aire lors de l'allongement de la vésicule et une énergie de déformation F_S .

En utilisant une approximation du profil des contraintes optiques de la forme $\sigma = \sigma_0 \cos^2\theta$ [162] (voir figure 7.8), l'énergie de déformation F_S peut ainsi être également décomposée en harmoniques sphériques, ce qui permet d'écrire l'énergie libre totale sous la forme [157] :

$$F = \frac{\kappa_c}{2} \sum_{l,m} E_l |u_{lm}|^2 - \kappa_c \left(\frac{2\sigma_0 R_0^3}{3\kappa_c} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{5}} u_{20} \quad (7.10)$$

avec

$$E_l = (l+2)(l-1) \left[l(l+1) + \frac{\Sigma R_0^2}{\kappa_c} + \frac{(2\sigma_0 R_0^3)/(3\kappa_c)}{(l+2)(l-1)} \right] \quad (7.11)$$

où Σ est la tension de la vésicule et κ_c son module de courbure. Ce dernier représente l'énergie qu'il faut fournir à la membrane pour induire une courbure, ainsi une vésicule fluctuante possède un module élastique κ_c de l'ordre de quelques $k_B T$.

La forme moyenne d'une vésicule déformée dans le double piège optique peut maintenant être déduite de la minimisation de l'énergie libre totale F , pour laquelle il n'existe qu'un seul mode avec une amplitude moyenne non nulle (i.e. de forme ellipsoïdale). En

minimisant F d'après l'équation 7.10, l'amplitude de ce mode est alors donnée par :

$$u_{20} = \frac{\sqrt{16\pi/5} \sigma_0 R_0^3}{72\kappa_c + 12\Sigma R_0^2 + 2\sigma_0 R_0^3} \quad (7.12)$$

Notons que la tension effective Σ de la vésicule dépend implicitement de la contrainte optique appliquée. En effet, en augmentant la puissance laser, la vésicule est alors de plus en plus allongée. Ainsi les fluctuations de sa membrane diminuent ce qui conduit à une augmentation de la tension de la vésicule.

Pour de faibles puissances, la tension effective Σ devrait être proche de la tension initiale Σ_0 , cette dernière pouvant être estimée analytiquement en fonction du régime considéré [160]. L'expression 7.12 peut donc être linéarisée pour de faibles excitations laser ($\sigma_0 R_0 \ll 6\Sigma$) :

$$u_{20} = \frac{\sqrt{16\pi/5} \sigma_0 R_0^3}{72\kappa_c + 12\Sigma R_0^2} \quad (7.13)$$

Cette amplitude u_{20} est par ailleurs directement liée aux taux de déformations, qui sont des grandeurs mesurables expérimentalement :

$$u_{20} = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{4\pi}{5}} \left(\frac{\Delta M}{R_0} - \frac{\Delta m}{R_0} \right) \quad (7.14)$$

Ajoutons que dans le régime de faible excitation optique, il est possible de trouver une approximation de la variation d'aire de la vésicule induite par la déformation de celle-ci [161, 164] :

$$\frac{\Delta A}{A} = \frac{k_B T}{8\pi\kappa_c} \ln \left(\frac{\Sigma}{\Sigma_0} \right) \quad (7.15)$$

Ainsi il semble alors possible d'extraire le module de courbure κ_c d'une vésicule à partir de la détermination expérimentale de la variation d'aire $\Delta A/A$ et du calcul de la tension à partir de la loi de Laplace en utilisant la forme géométrique de la vésicule, comme cela a été fait par Solmaz *et al.* [154, 159]. Cependant, la loi de Laplace ne permet pas de déterminer rigoureusement la tension effective Σ , car les fluctuations de la membrane ainsi que la résistance de la vésicule à la courbure (rigidité) doivent être prises en compte [165].

Une méthode alternative a alors été proposée [157, 160]. Celle-ci utilise la définition de la tension de la vésicule comme multiplicateur lagrangien de l'aire de la vésicule. Ainsi en utilisant l'équation 7.14 et le fait que la variation d'aire est reliée au paramètre de déformation u_{20} par $\frac{\Delta A}{A} = \frac{u_{20}^2}{2\pi}$ [163], il est possible d'éliminer la tension effective Σ dans l'équation 7.15, ce qui conduit finalement à :

$$\sigma_0 = \sqrt{\frac{5}{4\pi}} u_{20} \left[\frac{36\kappa_c}{R_0^3} + \frac{6\Sigma_0}{R_0} \exp \left(\frac{4\kappa_c u_{20}^2}{k_B T} \right) \right] \quad (7.16)$$

Nous voyons d'après cette formule qu'il est possible de déterminer la tension initiale Σ_0 de la vésicule en l'absence de champ laser ainsi que son module de courbure κ_c , connaissant la contrainte optique maximale σ_0 et l'amplitude de déformation u_{20} .

Notons que l'expression 7.16 reste valable dans la limite des faibles contraintes optiques appliquées sur la vésicule ($\sigma_0 R_0 \ll 6\Sigma$) et tant que la forme de la vésicule peut être approximée par un ellipsoïde [157]; un régime de saturation de la déformation doit exister aux fortes excitations laser.

7.3.3 Application à la détermination de propriétés mécaniques

Dans cette partie, nous allons montrer comment exploiter les déformations de vésicules sous faible excitation laser pour la détermination sans contact de leurs propriétés mécaniques. L'expression 7.16 précédemment établie, reliant la contrainte optique maximale σ_0 à l'amplitude de la déformation u_{20} , fait intervenir certaines propriétés mécaniques de notre système d'étude, ici la tension initiale Σ_0 de la vésicule et son module de courbure κ_c . En utilisant le modèle décrit au chapitre précédent pour le calcul des contraintes optiques sur une sphère de rayon R_0 , nous pouvons déterminer numériquement σ_0 dans le régime linéaire dans la mesure où les déformations induites sont faibles (et l'objet reste donc assez sphérique). De plus, le paramètre u_{20} peut être déduit très simplement des taux de déformations $\Delta M/R_0$ et $\Delta m/R_0$ mesurables expérimentalement.

Ainsi en représentant la contrainte optique maximale σ_0 en fonction de u_{20} , il est donc possible d'extraire les propriétés mécaniques de chaque vésicule, ces dernières étant des paramètres libres de l'équation 7.16.

Nous considérons ici la vésicule (POPC à 500mOsm) étudiée dans le régime linéaire. Comme nous le constatons sur la figure 7.9a, le paramètre de déformation u_{20} peut être nul lorsqu'une contrainte optique σ_0 est appliquée, ce qui est en désaccord avec l'équation 7.16. En effet, nous avons obtenu des taux de déformations quasi-nuls pour cette vésicule aux puissances laser les plus faibles (voir figure 7.7a), ce qui explique ce résultat.

Ce résultat, non physique, peut être dû à plusieurs artefacts expérimentaux. Un premier artefact à considérer est la limitation liée à la précision de la détection de l'interface de la vésicule aux puissances les plus faibles, ce qui peut expliquer ce résultat. Un deuxième artefact possible est le fait que des débris de vésicules peuvent se coller sur les parois de verre du capillaire, diminuant ainsi la contrainte optique réelle par rapport à la contrainte optique calculée. Pour limiter ce deuxième artefact, le capillaire en verre était préalablement nettoyé avec une solution de BSA (1%) mais il reste difficile d'éliminer complètement celui-ci.

Afin de tenir compte de ces artefacts et considérer une solution physique, nous considérons alors une contrainte optique effective $\sigma'_0 = \sigma_0 - \sigma_0^{offset}$, où σ_0 correspond à la

contrainte optique calculée (par le modèle présenté dans le chapitre précédent) et σ_0^{offset} est la contrainte optique induite juste avant le début du régime linéaire de déformation (voir figure 7.9b). Ici $\sigma_0^{offset} = 0.044\text{Pa}$.

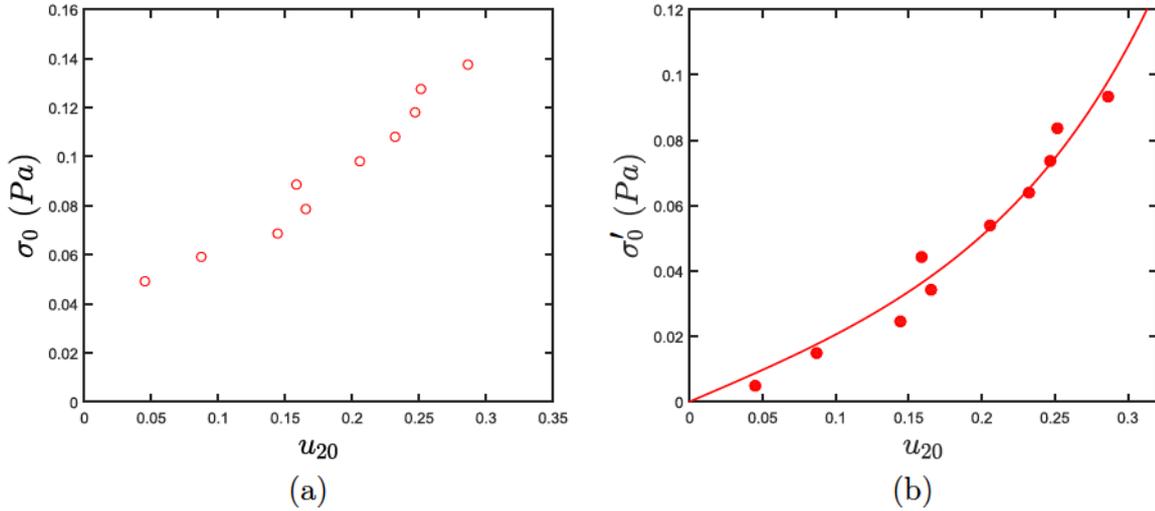


FIGURE 7.9 – Évolution de la contrainte optique maximale (a) calculée σ_0 et (b) effective σ'_0 en fonction de l'amplitude de déformation u_{20} d'une vésicule de phospholipides (POPC à 500mOsm).

En ajustant notre courbe expérimentale corrigée par l'expression 7.16 (voir figure 7.9b), nous trouvons une tension initiale pour cette vésicule $\Sigma_0 \simeq 4.43 \times 10^{-7} \text{ N/m}$ et un module de courbure $\kappa_c \simeq 7.29 \times 10^{-21} \text{ J} \simeq 1.8 k_B T$. Ces valeurs mettent donc bien en évidence le caractère très déformable de la vésicule.

Nous pouvons confronter ces résultats aux valeurs de la littérature pour des vésicules de phospholipides POPC de même nature (sucrose dans glucose). Plus particulièrement, nous pouvons comparer nos résultats à ceux de Solmaz *et al.*, la préparation de nos vésicules étant celle proposée dans leurs travaux [154, 159]. Dans leurs études, ils ont déduit le module de courbure de la variation d'aire de vésicules (POPC à 500mOsm), qui apparaît lors de la déformation de celles-ci dans un double piège optique utilisant des faisceaux à $\lambda_0 = 808\text{nm}$. Les valeurs annoncées dans les travaux de Solmaz *et al.* sont alors $\kappa_c \simeq 6.52 - 8.13 k_B T$. Nous constatons donc que la détermination proposée dans notre étude conduit au même ordre de grandeur pour κ_c , même si la valeur que nous trouvons est légèrement plus faible.

Ajoutons que d'autres méthodes ont été utilisées pour déterminer le module de courbure de vésicules de phospholipides POPC (sucrose dans glucose). En étudiant les fluctuations de la membrane de vésicules, le module de courbure moyen a été estimé à $\kappa_c \simeq 38.5 k_B T$ (pour une concentration osmotique de 75mOsm) [166], ce qui a également été mesuré par

aspiration à l'aide d'une micropipette (pour une concentration osmotique de 250mOsm) [167].

Notons que d'autres valeurs du module de courbure peuvent être trouvées dans la littérature pour des vésicules (POPC) dont les milieux interne et externe sont différents à ceux utilisés dans notre étude. Il est alors possible de trouver des valeurs de ce module très variables ($\kappa_c \simeq 6 - 40 k_B T$) d'une méthode de mesure à l'autre (déformation par champ électrique, AFM...) [156, 164, 168, 169].

Malgré la variabilité sur les valeurs de module de courbure trouvées dans la littérature, nous constatons que la valeur du module de courbure que nous déterminons dans l'exemple présenté ici (voir figure 7.9b) semble assez faible comparativement aux résultats publiés. Il est évident qu'une détermination plus précise du module de courbure de notre vésicule nécessiterait d'éliminer les artefacts mentionnés précédemment. Il faudrait d'autre part réaliser davantage d'expériences de déformation de vésicules afin d'obtenir une statistique importante permettant d'obtenir une valeur moyenne. En effet, l'ajustement de la courbe expérimentale $\sigma'_0 = f(u_{20})$ à l'aide de deux paramètres libres peut être relativement sensible à la valeur de κ_c , comme nous le montrons sur la figure 7.10 où nous considérons $\Sigma_0 = 4.43 \times 10^{-7}$ N/m trouvée précédemment. Une faible variation du module de courbure κ_c modifie alors fortement l'allure de la courbe $\sigma'_0 = f(u_{20})$.

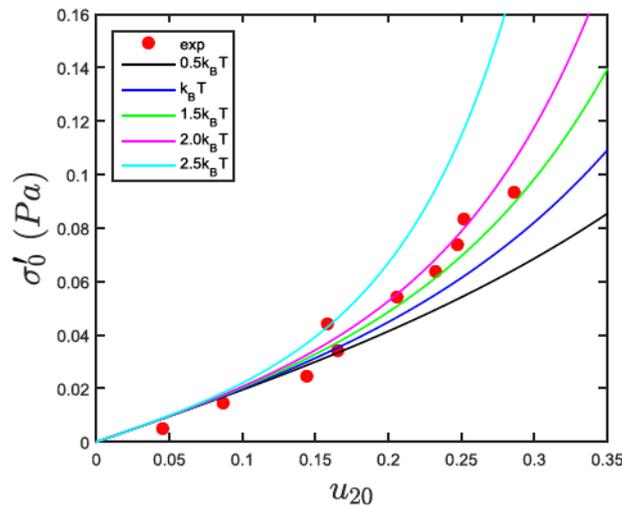


FIGURE 7.10 – Influence du module de courbure κ_c sur l'ajustement de la courbe expérimentale $\sigma'_0 = f(u_{20})$. La tension initiale de la vésicule est fixée à $\Sigma_0 = 4.43 \times 10^{-7}$ N/m.

Nous avons également étudié le régime linéaire de déformation pour plusieurs vésicules de phospholipides, cette fois obtenues pour une concentration osmotique de 1000mOsm. Notons que certaines vésicules présentaient une forme légèrement elliptique (ellipticité < 0.17) initialement qui peut résulter d'une elongation due à l'écoulement par exemple.

CHAPITRE 7. PIÈGEAGE ET DÉFORMATION D'OBJETS UNIQUES DANS UN DOUBLE PIÈGE OPTIQUE

Dans ces conditions, nous avons défini également des taux de déformation pour ces vésicules initialement elliptiques par $\frac{\Delta M}{M_0} = \frac{M-M_0}{M_0}$ et $\frac{\Delta m}{m_0} = \frac{m-m_0}{m_0}$. Ici M_0 et m_0 correspondent respectivement au demi grand-axe et au demi petit-axe en l'absence d'excitation laser. Afin de pouvoir calculer la contrainte optique σ_0 pour ces vésicules à partir de notre modèle (valable sur un objet sphérique), nous avons alors considéré le rayon moyen R_0 de celles-ci à partir du volume d'un ellipsoïde : $R_0 = (Mm^2)^{1/3}$.

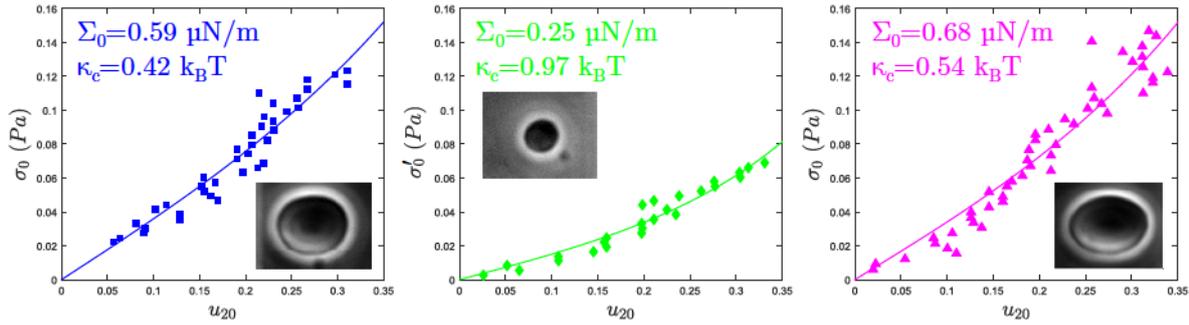


FIGURE 7.11 – Évolution de la contrainte optique maximale σ_0 en fonction de l'amplitude de déformation u_{20} pour plusieurs vésicules de phospholipides (POPC à 1000mOsm). Les images en insert montrent la forme initiale de la vésicule (i.e. pour $P_{tot} = 0$ W). Le rayon R_0 correspondant à chaque vésicule est (de gauche à droite) : $R_0 = 6.26\mu\text{m}$, $6.45\mu\text{m}$ et $7.67\mu\text{m}$.

En suivant la même démarche que celle décrite précédemment, nous avons alors déterminé les propriétés mécaniques de plusieurs vésicules POPC à 1000mOsm. L'ajustement des courbes expérimentales $\sigma_0 = f(u_{20})$ par l'expression analytique 7.16 pour ces vésicules est présentée en figure 7.11. Nous observons alors une certaine reproductibilité de la méthode, dans la mesure où les valeurs obtenues pour la tension initiale Σ_0 et le module de courbure κ_c varient peu d'une vésicule à l'autre.

Nous remarquons également que les valeurs de module de courbure κ_c obtenues pour ces vésicules (POPC à 1000mOsm) sont encore plus faibles que l'étude précédente à 500mOsm. Cela peut être dû à l'utilisation d'une forte concentration osmotique. En effet, il a été montré qu'une forte osmolarité tend à diminuer le module de courbure des vésicules [154, 155]. Plus probablement, l'obtention de faibles valeurs de κ_c peut s'expliquer par le fait que nous avons calculé la contrainte optique σ_0 sur des vésicules de forme initiale ellipsoïdale, à partir d'un modèle valable pour des objets sphériques (ou peu déformés). Une détermination fiable des propriétés mécaniques de vésicules initialement ellipsoïdales nécessiterait alors le développement d'un modèle d'optique géométrique plus adapté, qui prend en compte la forme ellipsoïdale de l'interface. À l'heure actuelle, peu de modèles ont été proposés pour le calcul de la contrainte optique exercée sur un ellipsoïde [144, 170, 171].

7.4 Déformation de vésicules sous forte excitation laser

Nous nous sommes intéressés jusqu'à présent à la déformation de vésicules sous faible excitation laser où il existe un régime linéaire, ce qui avait également été montré dans différentes études avec un double piège optique de longueur d'onde $\lambda_0 = 808\text{nm}$ [154, 157, 159]. Cependant, pour cette longueur d'onde, les faisceaux sont émis à partir de diodes laser qui ne permettent pas de générer de fortes puissances ($P_{tot}^{max} \sim 1\text{W}$). Du fait de cette limitation technologique, seul le régime linéaire pour lequel de faibles déformations sont induites a alors pu être exploré.

La question est donc maintenant de savoir quelles déformations peuvent être induites sur des vésicules de phospholipides dans notre double piège optique, pour lequel nous disposons de faisceaux laser de forte puissance ($P_{tot}^{max} \sim 3\text{W}$).

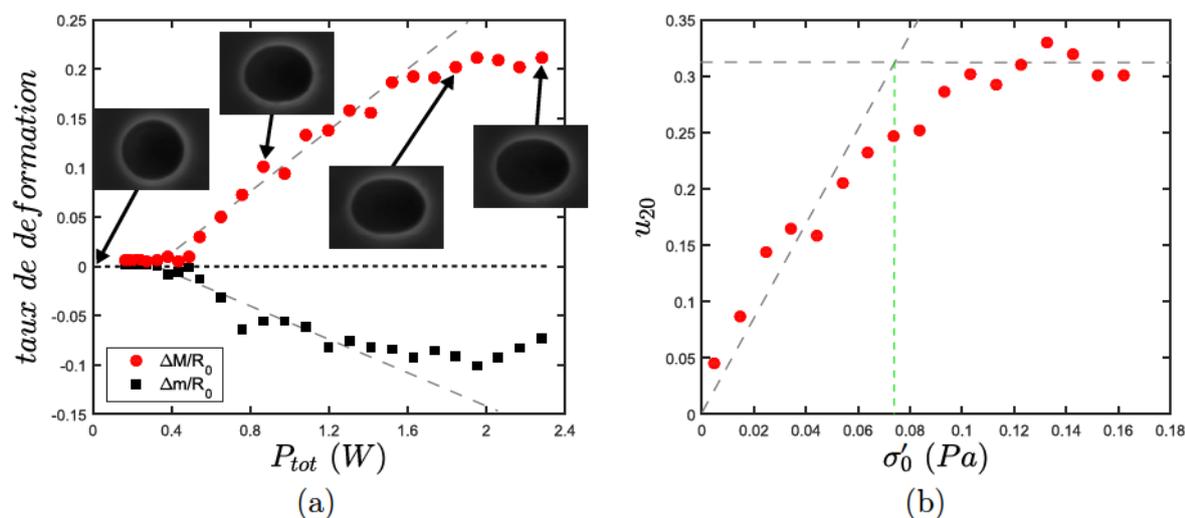


FIGURE 7.12 – (a) Évolution du taux de déformation longitudinale et transversale d'une vésicule de phospholipides (POPC à 500mOsm) en fonction de la puissance incidente totale. (b) Évolution de l'amplitude de déformation en fonction de la contrainte optique maximale (effective) σ'_0 .

Nous avons donc caractérisé la déformation de la vésicule étudiée dans le cadre du régime linéaire (voir partie 7.3.1), cette fois sous forte excitation laser en mesurant son taux de déformation longitudinale et transversale en fonction de la puissance laser incidente (voir figure 7.12). Nous observons alors que contrairement au régime linéaire, marqué par les traits pointillés sur la figure 7.12a, la déformation de la vésicule présente une saturation sous forte excitation laser. Cela témoigne donc très clairement d'un changement de mode de déformation aux fortes puissances.

Notons également que pour de fortes puissances laser, la déformation d'une vésicule initialement sphérique (de rayon R_0) en un ellipsoïde de révolution commence à être mis

en défaut. Néanmoins nous considérons cette géométrie comme encore valable dans une première approche.

Notons que dans le modèle décrivant la déformation de vésicule dans un double piège optique développé par Delabre *et al.* [157], et présenté dans ce chapitre (voir partie 7.3.2), une saturation est attendue aux fortes puissances. En effet aux fortes contraintes optiques, nous nous attendons à ce que l'ensemble des fluctuations de la membrane soient étirées et présentes dans le mode elliptique de déformation. Ainsi, nous pouvons exprimer simplement u_{20} par $2u_{20}^2 = 4\pi \frac{\Delta A}{A} = \Delta$ [163]. Nous obtenons ainsi une mesure de l'aire Δ "contenue" dans les fluctuations initialement à partir de l'amplitude de déformation u_{20} . D'autre part, le modèle théorique prédit une contrainte optique de transition (ou *crossover*) entre le régime linéaire de faible puissance ($\sigma_0 R_0 \ll 6\Sigma$) et le régime de saturation ($\sigma_0 R_0 \gg 6\Sigma$). La contrainte optique de transition σ_0^c est alors donnée par :

$$\sigma_0^c \approx \frac{6\Sigma_0}{R_0 \left(\sqrt{\frac{8\pi}{5\Delta}} - 1 \right)} \quad (7.17)$$

Avec la valeur de tension initiale $\Sigma_0 = 4.43 \times 10^{-7}$ N/m trouvée précédemment pour cette vésicule (de rayon $R_0 = 8.78\mu\text{m}$) et une amplitude de déformation $u_{20} \approx 0.31$ à la saturation (voir figure 7.12b), nous obtenons donc $\sigma_0^c \approx 0.07 - 0.08$ Pa, ce qui est compatible avec nos mesures expérimentales comme nous le constatons sur la figure 7.12b. Ainsi nos mesures semblent confirmer l'existence d'un régime de saturation associé aux déplissements des fluctuations de la membrane. À noter, qu'au-delà de ce régime de saturation, d'autres phénomènes tels que l'étirement de la membrane ("*stretching*") peuvent intervenir également. Néanmoins, il est à penser que la caractérisation du module d'étirement nécessiterait des contraintes optiques encore plus grandes.

Il est intéressant de remarquer également que la déformation d'une vésicule sous forte excitation laser demeure stationnaire, comme nous le montrons sur la figure 7.13 où nous avons mesuré le taux de déformation longitudinale $\frac{\Delta M}{R_0}$ au cours du temps pour la même vésicule. Le comportement est tout à fait semblable à ce qui peut être observé dans le régime linéaire de déformation. La vésicule répond rapidement à la contrainte optique appliquée et relaxe également rapidement à l'arrêt de l'excitation laser. Nous retrouvons donc un comportement très élastique et réversible des vésicules même dans le régime des fortes puissances.

Nous avons également observé des déformations très importantes sur des vésicules légèrement elliptiques initialement. Ainsi, en appliquant une contrainte optique sur ces vésicules, celles-ci s'alignent suivant l'axe des faisceaux et se déforment en un ellipsoïde

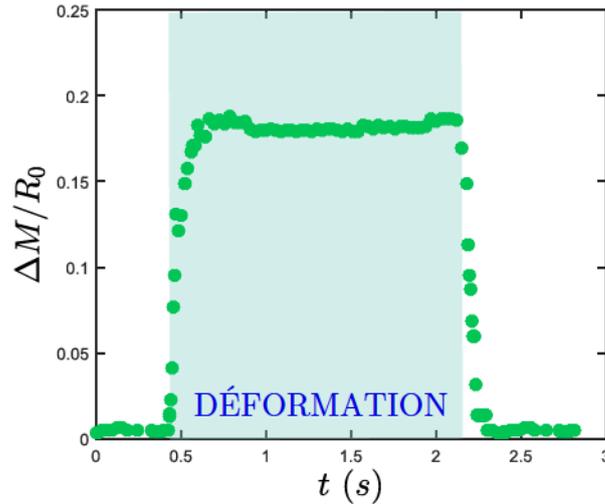


FIGURE 7.13 – Évolution du taux de déformation longitudinale $\Delta M/R_0$ d'une vésicule (POPC à 500mOsm) au cours d'une temps durant une expérience de déformation optique sous forte excitation optique ($P_{tot} = 2.17W$). La zone bleue correspond à la période d'application de la puissance laser.

plus allongé (voir figure 7.14). Aux fortes puissances laser, la déformation de telles vésicules présente clairement un comportement non-elliptique. En effet, l'interface n'est plus ajustable par une ellipse et la vésicule est alors déformée en une structure allongée, comme nous le voyons sur la figure 7.14.

Nous mettons donc ici en évidence un nouveau mode de déformation optique des vésicules, qui n'a jamais été observé auparavant en l'absence de chauffage et pour lequel il n'existe aucun modèle théorique à ce jour. La compréhension de ces morphologies nécessiterait alors d'explorer des ordres supérieurs dans la décomposition de la forme de la vésicule en harmoniques sphériques.

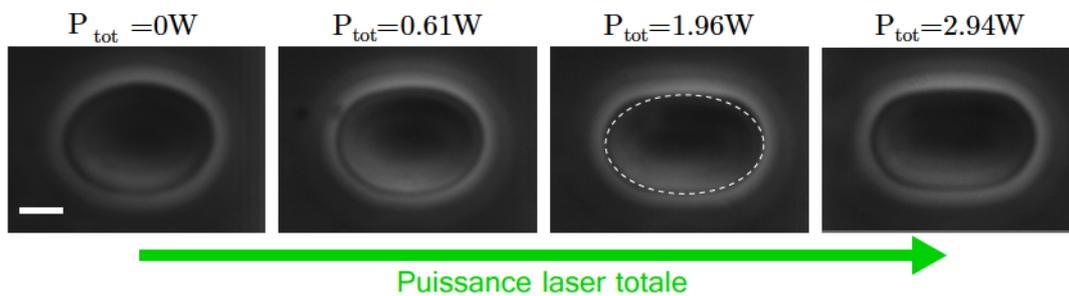


FIGURE 7.14 – Déformations non-linéaires d'une vésicule de phospholipides (POPC à 1000mOsm) initialement ellipsoïdale dans un double piège optique. La barre d'échelle correspond à $5\mu m$.

L'observation de telles déformations de vésicules induites optiquement sous forte excitation dans un double piège ouvre donc la voie vers de nouveaux développements théo-

riques décrivant la déformation non-linéaire et vers une mesure sans contact du module d'étirement κ_S des vésicules.

7.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons utilisé le double piège optique développé au cours de cette étude et prouvé son efficacité dans le piégeage et la déformation d'objets uniques mous, ici des vésicules de phospholipides.

Nous avons montré que la pression de radiation exercée par chaque faisceau laser dans ce double piège optique contribue à déplier les fluctuations de la membrane d'une vésicule ce qui conduit à la déformation de celle-ci. Ainsi pour de faibles excitations optiques, une vésicule initialement sphérique est étirée en un ellipsoïde de révolution suivant la direction des faisceaux. Nous avons alors montré qu'il existe un régime linéaire de déformation avec la puissance (ou la contrainte optique) appliquée et que celui-ci peut être exploité pour la détermination de certaines propriétés mécaniques des vésicules comme la tension initiale ou le module de courbure.

Nous avons également mis en évidence pour la première fois (à notre connaissance) l'existence d'un régime non-linéaire de déformation qui apparaît aux fortes excitations laser pour les vésicules les plus déformables.

Le travail effectué avec ce double piège optique offre de nombreuses perspectives très intéressantes, comme par exemple le développement d'un modèle théorique décrivant la déformation de vésicules aux fortes puissances.

Une autre perspective à explorer serait le développement d'un programme numérique afin de calculer la contrainte optique exercée sur des objets non sphériques dans ce double piège. Cela nous permettrait alors de caractériser plus rigoureusement la déformation optique de vésicules, particulièrement dans le régime non-linéaire où les déformations sont importantes. L'observation de morphologies particulières aux fortes puissances suggère alors d'étendre ce modèle numérique à des formes plus complexes que des ellipsoïdes de révolution. Cela nécessiterait probablement d'abandonner l'approche d'optique géométrique, employée jusqu'à présent pour le calcul des contraintes, pour une approche ondulatoire. L'approche d'optique géométrique est en effet parfaitement adaptée au cas des objets sphériques mais devient bien plus difficile à mettre en œuvre sur d'autres morphologies.

D'un point de vue plus expérimental, nous pouvons imaginer coupler nos faisceaux laser de fortes puissances à $\lambda_0 = 532\text{nm}$ à une autre longueur d'onde, afin d'induire de grandes déformations en présence de chauffage par exemple. Notre double piège optique présente en effet l'avantage de comprendre un dispositif optique "ouvert" utilisant des

fibres optiques monomodes sur une grande gamme de longueurs d'ondes, ce qui nous permet d'ajouter assez simplement une autre excitation laser.

Comme nous l'avons remarqué aux faibles puissances laser, il est difficile de mesurer de très faibles déformations par imagerie directe de la vésicule, cette méthode étant limitée par la diffraction à des déformations de l'ordre de $0.5\mu\text{m}$. Pour aller au-delà de cette limitation, nous pouvons alors envisager d'augmenter la sensibilité de détection en étudiant la modification du couplage fibre à fibre [172]. En effet, lorsqu'un objet mou se déforme sous l'action de la pression de radiation optique, celui-ci agit alors comme une lentille pour les faisceaux incidents [173], et dont la focale dépend de la déformation. Cela est alors une alternative plus simple aux méthodes pompe-sonde généralement utilisées.

L'amélioration de la sensibilité de détection permettrait alors d'appliquer la déformation dans un double piège optique à l'étude d'objets moins déformables, telles que des coques élastiques [174], des gouttes de tensions interfaciales assez élevées, ou encore des cellules, que nous avons d'ailleurs réussi à piéger dans notre dispositif (voir figure 7.15).

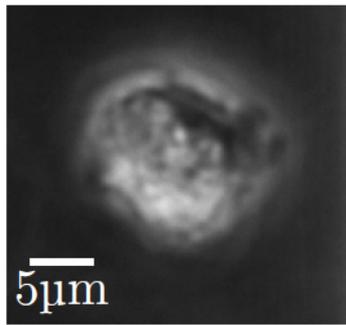


FIGURE 7.15 – Agrégat de cellules épithéliales mammaires (*MDA-MB231*) piégé dans notre double piège optique pour $P_{tot} = 1.84\text{ W}$.

Chapitre 8

Conclusions et perspectives

Le travail de recherche effectué au cours de cette thèse a été consacré à la manipulation et la déformation optique d'interfaces liquides molles, cela dans deux géométries fondamentales : plane et sphérique. Nous avons alors montré qu'il est possible d'exploiter les déformations d'interfaces induites par pression de radiation optique comme outil sans contact pour déterminer les propriétés mécaniques de fluides complexes à petite échelle, telle que la tension interfaciale.

La pression de radiation optique, qui résulte d'un transfert de quantité de mouvement de la lumière vers la matière (voir chapitre 2), constitue en effet une alternative très intéressante aux méthodes "conventionnelles" pour déformer des interfaces de manière active et sans contact. Cependant les forces optiques mises en jeu sont très faibles (typiquement de quelques dizaines de pN seulement), l'observation directe d'une déformation nécessite alors l'utilisation de systèmes fluides particuliers, dont la caractéristique principale est de présenter une très faible tension interfaciale.

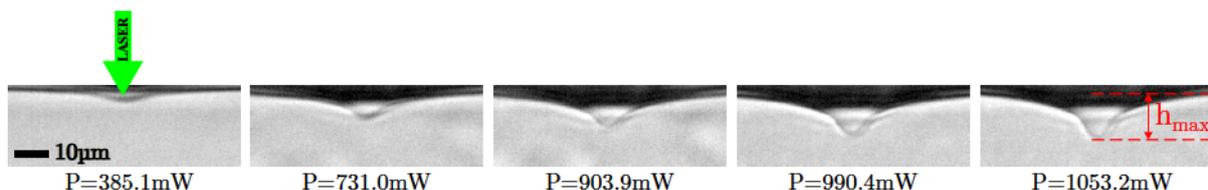


FIGURE 8.1 – Déformations d'interfaces liquides induites par laser à puissances modérées dans des microémulsions quasi-critiques à $T - T_C = 20K$ pour $\omega_0 = 4.47\mu m$.

Dans le cas de la géométrie plane, nous avons alors montré au chapitre 4 qu'en focalisant un faisceau laser continu à l'interface liquide de différents systèmes diphasiques déformables, plusieurs régimes de déformations peuvent apparaître suivant la puissance laser appliquée. Ainsi pour de faibles puissances laser, nous observons un régime linéaire de la hauteur maximale de déformation de l'interface avec la puissance incidente (voir figure 8.1). La déformation est alors assimilable à une bosse de faible amplitude et de faible

rapport d'aspect. En revanche, pour des puissances laser plus importantes, la hauteur de déformation de l'interface dévie de ce régime linéaire et atteint un seuil en puissance au-delà duquel l'interface se déstabilise vers une déformation de grande amplitude et de grand rapport d'aspect.

Nous avons étudié ces deux régimes particuliers de déformations et montré qu'ils peuvent être appliqués à la détermination de très basses tensions interfaciales, ce qui est une mesure complexe pour laquelle la plupart des méthodes se révèlent inopérantes, d'autant plus à l'échelle micrométrique. Le grand avantage des méthodes optiques, outre le fait d'être sans contact, réside dans la taille du faisceau excitateur qui peut aisément être réduite au micromètre, offrant ainsi une mesure locale indépendante des conditions aux limites.

La déformation d'une interface liquide plane par laser avait déjà été exploitée par Sakai *et al.* pour mesurer la tension superficielle de l'interface eau-air [46]. Pour ce type d'interfaces classiques, la déformation induite est de l'ordre de la dizaine de nanomètres et n'est pas observable de manière directe. Sakai *et al.* ont donc déterminé la tension de surface en étudiant la modification du rayon d'un faisceau laser sonde en champ lointain par l'effet de lentille induit par l'interface déformée par un faisceau pompe. Dans le cas de systèmes très déformables, il est alors possible de visualiser de manière directe les déformations d'interfaces et donc de mesurer la hauteur de déformation. Ainsi en exploitant le régime linéaire de déformation, nous pouvons déterminer la tension interfaciale, ce qui avait été réalisé expérimentalement pour la première fois par J. Petit [70]. Bien qu'elle soit assez simple, nous avons montré au chapitre 4 que cette méthode demande en revanche de nombreuses mesures en puissance pour un même *waist*. De plus, celle-ci dépend fortement des paramètres de l'expérience et nécessite alors une caractérisation complète et précise des systèmes expérimentaux et du faisceau incident, ce que nous avons d'ailleurs présenté au chapitre 3.

Dans ce contexte, nous avons donc proposé dans notre étude une méthode plus simple et plus rapide à mettre en place pour déterminer de très faibles tensions interfaciales en exploitant le seuil d'instabilité. Tirant profit de la caractérisation expérimentale effectuée et du développement de l'expression analytique de la puissance seuil, cette méthode s'avère tout à fait adaptée à de telles mesures comme nous l'avons montré lors de la comparaison de ces méthodes optiques à l'étude de la brisure d'une colonne liquide. Afin de pouvoir appliquer cette nouvelle méthode à des systèmes diphasiques déformables présentant un fort contraste d'indices optiques, un travail est actuellement en cours pour déterminer le terme correctif à apporter à l'expression de la puissance seuil établie au chapitre 4.

Nous nous sommes ensuite intéressés au chapitre 5 aux déformations non-linéaires des

interfaces liquides planes induites sous forte excitation laser. En effet, nous avons montré qu'au-delà du seuil de déstabilisation de l'interface liquide, celle-ci adopte une morphologie conique tout à fait singulière que nous avons appelée "cône optique" (voir figure 8.2). Nous avons donc étudié la morphologie de ces cônes liquides, qui sont induits dans tous nos systèmes fluides, et plus particulièrement le demi-angle d'ouverture θ_c de ces derniers.

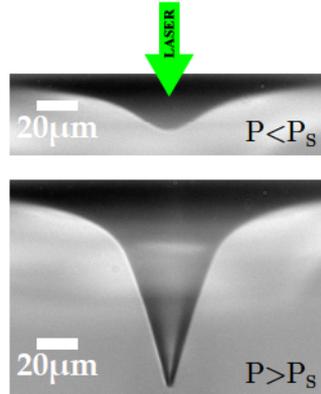


FIGURE 8.2 – Déformation d'une interface liquide induite par pression de radiation dans des phases de Winsor au toluène ($S = 6.0\%wt$). La puissance est respectivement $P = 1.51 W$ (haut) et $P = 1.55 W$ (bas), la taille du faisceau est $\omega_0 = 12.88\mu m$.

Une première caractérisation expérimentale nous a permis de montrer que l'angle du cône dépend fortement des paramètres de l'excitation laser mais également des caractéristiques des fluides utilisés, ce qui est analogue aux comportements des cônes de Taylor induits sous champ électrique intense. De plus, cette étude expérimentale a conduit à la mise en évidence du rôle de la réflexion totale comme mécanisme nécessaire à l'émergence des cônes optiques.

Le développement d'un modèle analytique des cônes optiques (réalisé par T. Guérin, théoricien au sein de notre laboratoire) sur la base de l'équation d'équilibre de l'interface soumise à la pression de radiation optique a permis de rendre compte des dépendances observées dans l'expérience. Ce modèle prédit alors assez fidèlement les dépendances du demi-angle du cône optique en fonction des paramètres, quel que soit le système fluide utilisé, dans la mesure où les effets de gravité peuvent être négligés. Lorsque ces derniers deviennent plus importants, le modèle théorique conduit à une sous-estimation de l'angle du cône et les effets de gravité doivent alors être pris en compte dans l'équation d'équilibre de l'interface, ce qui représente un travail analytique complexe actuellement en cours.

La prise en compte des effets de gravité peut en revanche être réalisée de manière assez simple par l'utilisation de l'outil numérique. Ainsi la résolution de l'équation de l'interface en présence de gravité par intégration numérique conduit également à l'émergence de cônes optiques sous fortes excitations laser, dont nous pouvons déduire le demi-angle. Les résultats numériques obtenus ont alors confirmé les tendances expérimentales et théo-

riques et ont permis de clarifier l'importance de la gravité dans nos expériences.

Comme nous l'avons mentionné au cours du chapitre 5, certaines études sont encore à réaliser afin d'appréhender totalement la complexité des cônes optiques, comme par exemple la dynamique de formation du cône ou l'effet des réflexions secondaires sur l'ouverture des cônes pour lesquelles nous avons avancé quelques pistes.

L'existence de cônes liquides dans le régime optique témoigne alors de la forte analogie existant entre opto- et électro-dynamique des interfaces, et sur laquelle nous avons insisté tout au long du chapitre 5. Cette analogie a été renforcée par l'observation d'autres phénomènes d'origine optique tels que la multi-filamentation liquide ou encore la génération de gouttes monodisperses à l'extrémité du cône optique. Cette dernière observation ouvre ainsi la voie vers l'*opto-spraying* (analogue des sprays formés sous champ électrique intense), où il serait alors possible de contrôler la taille des gouttes émises à partir d'une structuration du cône optique.

Étant donné que le montage expérimental servant à la déformation d'interfaces planes ne peut être utilisé quantitativement pour manipuler des interfaces molles en géométrie sphérique, nous avons alors conçu et développé un double piège optique fibré dont la particularité réside dans l'utilisation de faisceaux de fortes puissances et de longueur d'onde $\lambda_0 = 532\text{nm}$, ce qui n'a jamais été employé auparavant pour un tel piège, ce que nous avons décrit au chapitre 6. L'absence de sources laser fibrées de fortes puissances à cette longueur d'onde nous a alors amené à mettre en place un dispositif optique dédié au couplage d'un faisceau laser dans deux fibres optiques monomodes. L'alignement de ces fibres optiques dans un dispositif microfluidique adapté constitue alors le double piège, qui nous permet à la fois de piéger et déformer un objet unique par la pression de radiation optique induite par chaque faisceau divergent.

La mise en place d'un tel double piège optique s'accompagne d'une étape de calibration, dont le but est de connaître la puissance de chacun des deux faisceaux incidents sur l'objet. En adaptant la méthode proposée par Ferrara *et al.* [145] à la géométrie de notre dispositif, nous avons alors mis en place une routine expérimentale qui permet de réaliser cette calibration de manière simple et rapide.

En dépit du nombre important d'études utilisant ce double piège optique, il n'existe pas actuellement de compréhension rhéologique détaillée de la déformation au sein de ce dernier, celui-ci servant le plus souvent d'outil comparatif.

Lors du chapitre 7, nous avons alors utilisé ce double piège optique pour la déformation d'un système modèle mou à savoir des vésicules de phospholipides. Comme nous l'avons mentionné précédemment, les vésicules de phospholipides représentent un système de choix pour la modélisation d'objets biologiques comme les cellules. La complexité des mécanismes cellulaires, souvent liées à la déformabilité de leurs membranes, peut être

appréhendée par une bonne connaissance de la rhéologie de ces dernières. Ainsi la détermination des propriétés mécaniques des bicouches lipidiques, notamment des vésicules, a suscité de nombreuses études dans lesquelles des déformations de la membrane sont induites de différentes manières : aspiration par micropipette [17, 18], déformation par champ électrique [164, 175], manipulation optique de billes collées [176, 177, 178] , etc. Contrairement à la plupart de ces méthodes, l'utilisation d'un double piège optique permet d'induire une déformation des vésicules sans aucun contact avec celles-ci (voir figure 8.3) et ainsi de déduire certaines de leurs propriétés mécaniques sans perturber la mesure.

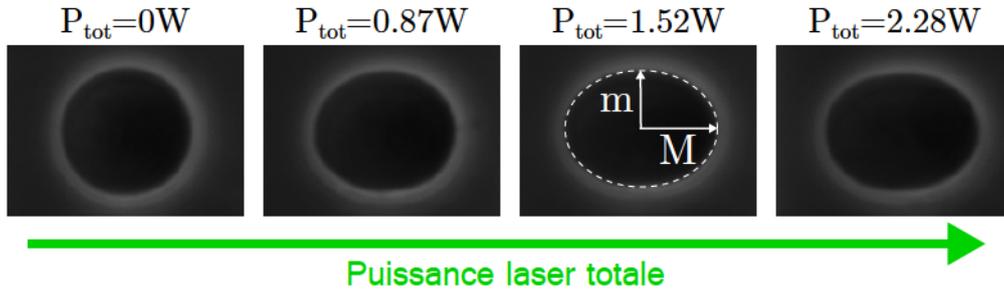


FIGURE 8.3 – Déformation sans contact d'une vésicule de phospholipides dans un double piège optique. Le rayon initial de la vésicule est $R_0 = 8.78\mu\text{m}$.

Nous avons alors montré que de façon similaire aux interfaces liquides planes, la déformation d'une vésicule dans un double piège optique présente également plusieurs régimes suivant la puissance laser appliquée. Pour de faibles puissances, il existe un régime linéaire de déformation pour lequel une vésicule initialement sphérique s'allonge sous la forme d'un ellipsoïde suivant l'axe des faisceaux. En revanche la déformation de la membrane n'évolue plus linéairement avec la contrainte optique appliquée mais présente une saturation pour les puissances laser les plus élevées. Grâce à l'utilisation de faisceaux laser de fortes puissances, nous avons réussi à mettre en évidence pour la première fois dans cette étude l'existence d'un régime non-linéaire de déformation purement optique des vésicules dans un double piège optique. Nous avons également montré qu'il est possible d'explorer d'autres modes de déformations que des ellipsoïdes sous forte excitation laser, pour lesquels une vésicule adopte alors une forme de "cigare". Ainsi, bien que des études théoriques aient été réalisées pour expliquer le régime linéaire de déformation, il n'existe en revanche aucun modèle décrivant la déformation de vésicules dans un double piège optique aux fortes puissances.

Nous soulignons encore une fois avec ces expériences en géométrie sphérique la forte analogie qui existe entre le régime optique et l'électro-hydrodynamique des interfaces. En effet, les déformations de vésicules induites dans notre double piège optique sont très similaires à celles induites sous champ électrique intense [164, 179, 180] comme nous le montrons sur la figure 8.4a où une vésicule initialement sphérique est étirée dans le sens

du champ électrique créé entre deux plaques. Ajoutons que ces comportements électriques ont également été observés pour des gouttes suspendues [32, 181, 182] dont les déformations vers une forme ellipsoïdale sont d'autant plus importantes que le champ électrique appliqué est intense (voir figure 8.4b).

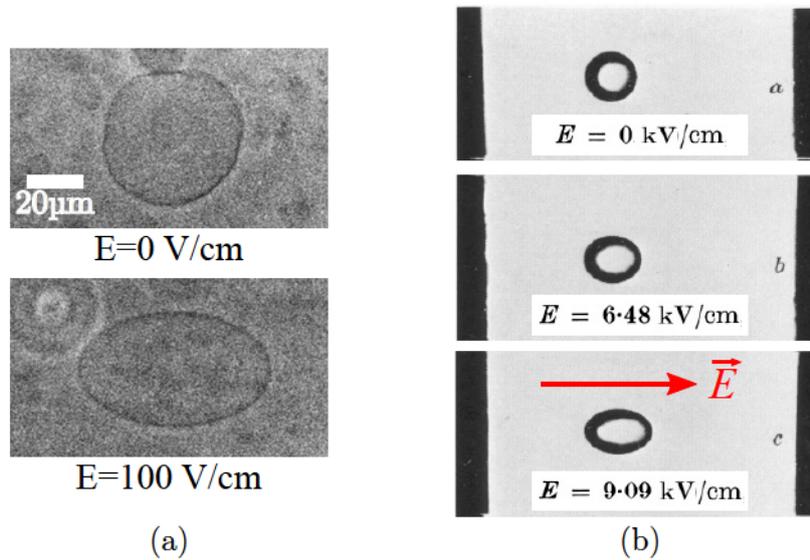


FIGURE 8.4 – (a) Déformation d'une vésicule de phospholipides EYPC sous champ électrique. Issue de [164]. (b) Déformation d'une goutte d'eau suspendue dans une huile silicone sous champ électrique électrique. Issue de [181].

L'existence de cette analogie dans la géométrie sphérique suggère alors la possibilité de générer dans notre double piège optique des déformations de gouttes vers des formes coniques, comme cela est observé sous champ électrique intense (voir figure 8.5). D'après ce que nous avons établi au chapitre 5 pour des interfaces planes, l'émergence des cônes optiques résulte de la réflexion totale du faisceau laser incident à l'interface liquide. Dans le cas d'un double piège optique, chaque interface est soumise à deux composantes de la pression de radiation optique. Ainsi bien que la composante incidente ne puisse conduire à une déformation conique, les faisceaux se propageant depuis le milieu le moins réfringent, il n'en est pas de même pour la composante transmise.

L'observation de telles déformations serait alors facilitée par l'utilisation de systèmes déformables présentant un fort contraste d'indices optiques (tels que des gouttes d'huile dans l'eau de très faible tension interfaciale), pour lesquels l'amplitude de la pression de radiation devient importante.

La suite logique du travail de recherche effectué au cours de cette thèse est donc orientée vers la déformation de gouttes ou de sphères molles dans notre double piège optique, en vue de généraliser l'étude à des systèmes fluides plus complexes. La déformation de gouttes molles dans notre double piège optique permettrait dans un premier temps la

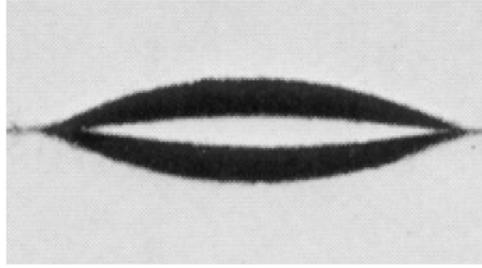


FIGURE 8.5 – *Déstabilisation de l'interface d'une goutte d'eau suspendue dans une huile silicone sous champ électrique électrique intense. Issue de [181].*

caractérisation des propriétés rhéologiques d'un système modèle simple en présence de confinement. Cela permettrait alors par la suite d'étudier l'influence du confinement sur les propriétés rhéologiques de systèmes plus complexes comme des fluides viscoélastiques, des gels ou des solides élastiques, de plus en plus utilisés comme sondes locales (sous forme de microsphères ou de coquilles déformables).

Parallèlement, l'avantage des gouttes réside dans le contraste d'indices de réfraction important qui peut exister avec le milieu environnant, ce qui permettra d'explorer une autre voie peu étudiée, pour ne pas dire totalement vierge, celle des déformations non-linéaires de grand rapport d'aspect telles que des formes en "cigare" ou encore l'apparition de pointes coniques induites par la pression de radiation de deux ondes laser contra-propageantes.

Les résultats obtenus dans ce travail de thèse ouvrent ainsi plusieurs perspectives très intéressantes pour la manipulation et la déformation d'interfaces molles par pression de radiation optique, en vue de caractériser précisément la rhéologie de fluides complexes à l'échelle du micron. Les forces optiques demeurent un outil de choix pour l'étude sans contact et à petite échelle de la matière molle tant du point de vue de la micro-rhéologie que de celle de la micro-structuration active.



Annexe A

Détermination des indices de réfraction dans des systèmes critiques

La méthode de goniométrie utilisée se base sur l'étude du minimum de déviation de la lumière par un prisme et permet d'obtenir une mesure directe de l'indice optique absolu d'un matériau ou d'un fluide donné. Les microémulsions quasi-critiques étant un système complexe dépendant de la température, nous avons donc adapté cette technique classique à la mesure d'indices de réfraction dans ces systèmes particuliers.

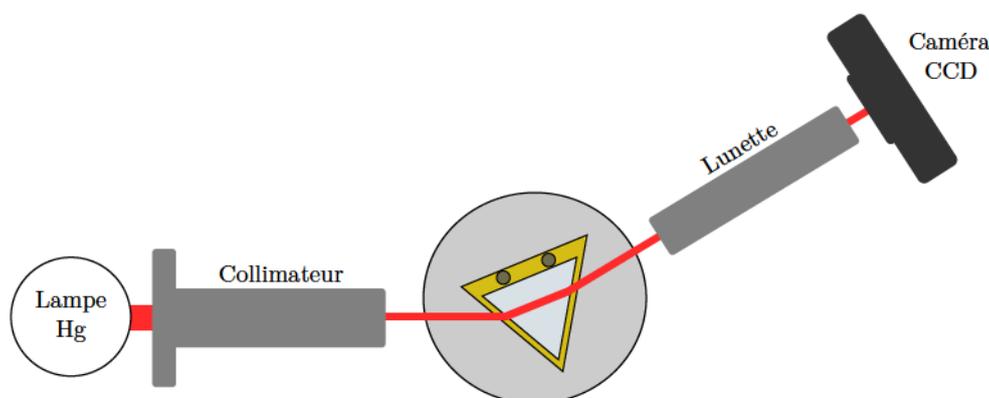


FIGURE A.1 – Schéma du goniomètre utilisé pour la détermination des indices optiques

Notre échantillon est donc contenu dans une cellule prismatique optiquement transparente (en quartz à faces polies), thermostatée par un four en laiton qui nous permet de varier l'écart à la température critique de l'échantillon. La température de ce four est assurée par une résistance chauffante contrôlée par PID. Une sonde est également placée dans le four, ce qui permet de mesurer la température au niveau de l'échantillon et ainsi d'ajuster cette dernière par rétroaction si besoin. Le four contenant la cellule remplie de notre échantillon est placé sur la plateforme tournante d'un goniomètre, entre le collimateur et la lunette de visée, comme illustré sur la figure A.1.

Notre échantillon est éclairé par un faisceau de lumière issu d'une lampe à vapeur

de mercure basse pression comportant plusieurs raies, qui est ensuite collimaté via une fente de largeur réglable placée au foyer objet d'une lentille convergente. Pour nos mesures d'indices optiques, nous avons seulement considéré la raie la plus lumineuse, possédant une longueur d'onde de 656.28nm.

Ainsi lorsque le faisceau lumineux incident intercepte notre échantillon d'indice optique n_k , celui-ci est dévié par la cellule prismatique. Cette déviation angulaire notée D , dépendant des propriétés du milieu traversé, est ensuite mesurée de façon précise à l'aide de la lunette de visée horizontale du goniomètre et permet de déduire l'indice optique n_k comme nous allons le montrer.

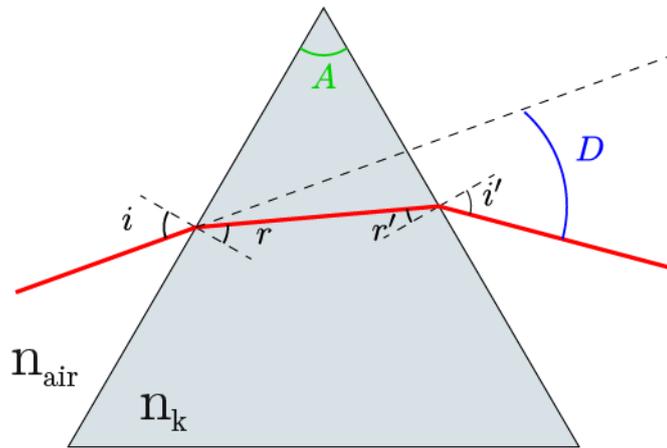


FIGURE A.2 – Déviation d'un rayon lumineux par un prisme

Considérons un rayon lumineux se propageant dans l'air ($n_{air} = 1$) et interceptant le milieu d'indice optique n_k avec une incidence i . Ce rayon est donc réfracté une première fois à l'entrée du prisme avec un angle r , traverse ensuite le milieu d'indice optique n_k , puis atteint la paroi du prisme avec une incidence r' avant d'être réfracté une seconde fois à la sortie du prisme (voir figure A.2. D'après la loi de Snell-Descartes, les angles incidents et réfractés au deux impacts sont tels que :

$$\begin{aligned} \sin i &= n_k \sin r \\ n_k \sin r' &= \sin i' \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

De plus angle d'ouverture du prisme A (ici égal à 45° pour notre cellule) s'exprime simplement par :

$$A = r + r' \quad (\text{A.2})$$

et la déviation D du faisceau par rapport à la direction initiale s'exprime :

$$D = i + i' - A \quad (\text{A.3})$$

En dérivant l'équation A.3 par rapport à l'angle d'incidence i , il est possible de montrer que la déviation du rayon passe par un minimum noté D_m pour $i = i' = i_m$ et $r = r' = r_m$.

D'après les équations A.2 et A.3, nous trouvons :

$$\begin{aligned} i_m &= \frac{D_m + A}{2} \\ r_m &= \frac{A}{2} \end{aligned} \tag{A.4}$$

Ainsi en mesurant l'angle de déviation minimal D_m , nous pouvons alors déduire directement l'indice de réfraction n_k du milieu traversé puisque :

$$n_k = \frac{\sin\left(\frac{A + D_m}{2}\right)}{\sin\left(\frac{A}{2}\right)} \tag{A.5}$$

Cette méthode de goniométrie possède l'avantage d'être simple à mettre en œuvre et permet une mesure directe et absolue de l'indice optique de chaque phase de l'échantillon démixté, en déplaçant la cellule verticalement par rapport à la fenêtre d'ouverture du four prismatique. Elle reste néanmoins limitée, par sa résolution ($3 \cdot 10^{-3}$), à des contrastes d'indices optiques relativement élevés et ne peut donc pas être utilisée extrêmement proche du point critique.

Notons que dans le calcul présenté ici, nous n'avons pas pris en compte le décalage du faisceau lumineux induit par les parois (en entrée et en sortie) du prisme. L'épaisseur de ces parois étant faible (1 mm), cela engendre une déviation supplémentaire qui reste négligeable.



Annexe B

Détermination du contraste de masse volumique

Le contraste de masse volumique $\Delta\rho$ entre les deux phases de l'échantillon est déterminé expérimentalement par crémage. Cette méthode consiste à étudier la dynamique de remontée d'une goutte de la phase supérieure (la moins dense) lorsqu'elle est plongée dans la phase inférieure (la plus dense).

Pour ce faire, nous induisons par pression de radiation optique un jet de la phase du haut dans celle du bas (voir chapitre 4) qui, en l'absence de champ laser, se brise en gouttes sous l'effet des forces capillaires. Ces gouttes remontent ensuite jusqu'à la phase supérieure sous l'effet de la gravité, comme présenté sur la figure B.1a dans des phases de microémulsions à $\Delta T = 35\text{K}$.

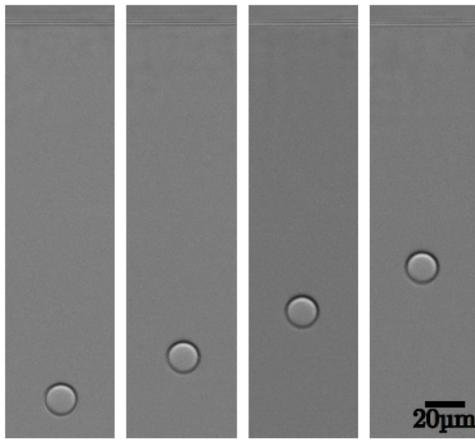
En effectuant un suivi de ces gouttes au cours du temps avec le logiciel ImageJ, nous déterminons ainsi leur vitesse v de remontée qui dépend de leur rayon R_g et du contraste de densité [72] :

$$v(R_g^2) = \frac{2\Delta\rho g}{3\eta_1} \left(\frac{\eta_1 + \eta_2}{2\eta_1 + 3\eta_2} \right) R_g^2 \quad (\text{B.1})$$

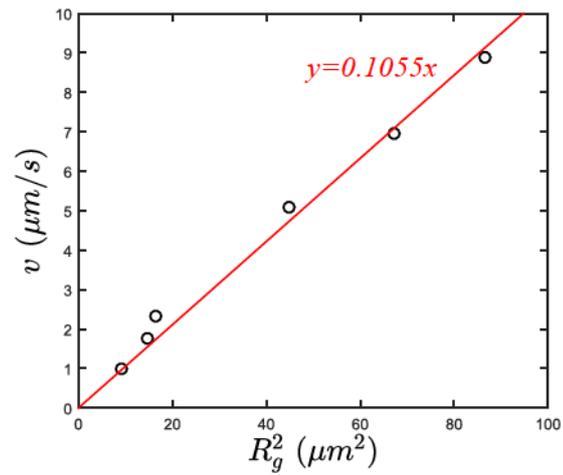
où $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$ et η_k ($k = 1, 2$) sont les viscosités des deux phases.

Ainsi, en étudiant cette dynamique de remontée pour des gouttes de rayons R_g différents, nous pouvons tracer l'évolution de la vitesse v en fonction de R_g . Nous obtenons alors une droite dont la pente est directement proportionnelle au contraste de densité $\Delta\rho$ de l'échantillon diphasique, d'après la formule B.1. Un exemple correspondant à un écart à la température critique $\Delta T = 35\text{K}$ est présenté en figure B.1b pour lequel nous trouvons $\Delta\rho = 28.31 \text{ kg.m}^{-3}$.

Expérimentalement, nous considérons une goutte isolée afin de ne perturber sa dynamique de remontée par une goutte voisine. Une goutte peut par exemple se trouver dans



(a)



(b)

FIGURE B.1 – (a) *Dynamique de remontée d'une goutte dans des phases de microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 35K$. L'intervalle de temps entre chaque image est $\Delta t = 0.056s$.* (b) *Évolution de la vitesse de remontée d'une goutte en fonction du carré de son rayon dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 35K$.*

la traînée visqueuse d'une autre ce qui induit alors des effets indésirables pour la mesure de $\Delta\rho$.

Annexe C

Détermination de la tension interfaciale par brisure

Afin de déterminer la tension interfaciale γ de nos échantillons, nous induisons par pression de radiation optique un jet de la phase du haut dans celle du bas (voir chapitre 4) qui, en l'absence de champ laser, se déstabilise sous l'effet des forces capillaires comme nous le montrons sur la figure C.1a.

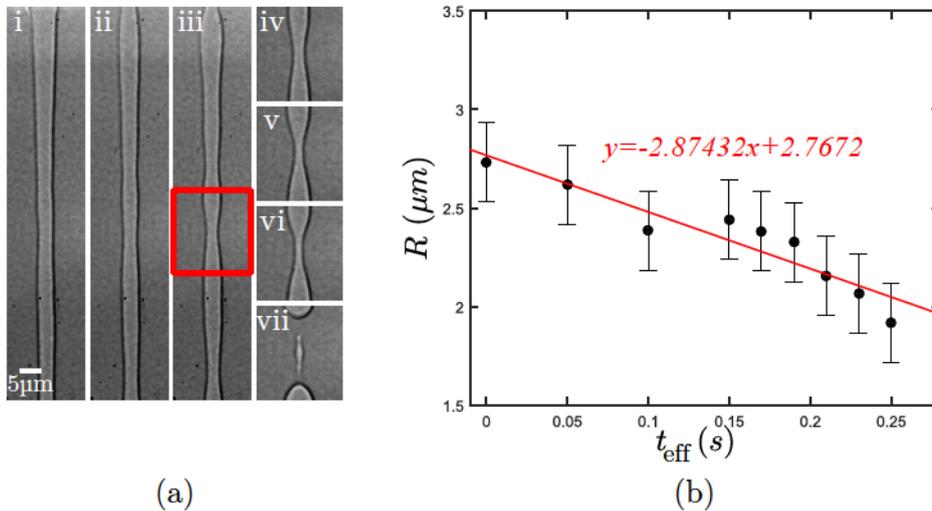


FIGURE C.1 – (a) *Dynamique de brisure d'une colonne liquide induite par laser dans des phases de microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5K$. Le temps après extinction du faisceau laser est respectivement $t = 0s$ (i), $0.39s$ (ii), $0.89s$ (iii), $1.09s$ (iv), $1.44s$ (v) et $1.94s$ (vi).* (b) *Évolution du rayon du cou de la brisure en fonction du temps effectif dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 35K$. Le temps effectif est défini ici de telle manière à ce que le premier rayon mesuré corresponde à $t_{eff} = 0s$.*

En mesurant le rayon du cou durant la dynamique de brisure (voir figure C.1b), il est alors possible de déduire la tension interfaciale d'après les propriétés universelles de la

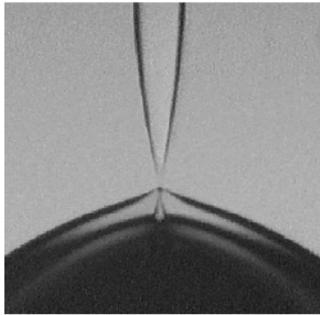
dynamique de pincement :

$$R(t) = H \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right) \frac{\gamma}{\eta_1} (t^* - t) \quad (\text{C.1})$$

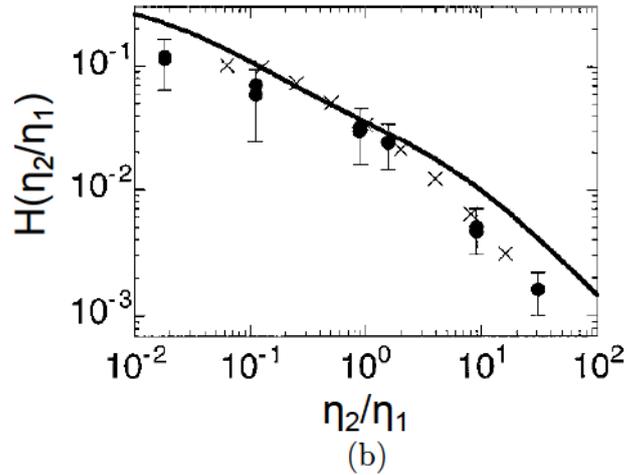
où $H \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right)$ est un facteur dépendant du rapport des viscosités (les indices 1 et 2 correspondent respectivement à la phase du bas et celle du haut), γ est la tension interfaciale et t^* correspond à l'instant auquel le cou se brise. Les viscosités sont estimées à partir de la formule empirique 3.10 présentée au chapitre 3.

La tension interfaciale γ se déduit alors de la pente de la courbe expérimentale $R(t)$, connaissant H et η_1 .

Bien que le coefficient H soit assez bien caractérisé dans le cas d'une brisure asymétrique d'un jet de fluide de viscosité η_2 s'écoulant dans un fluide de viscosité η_1 dans le régime visqueux (voir figure C.2a-b) [80, 183, 184], une telle caractérisation de H n'existe pas dans le cas d'une brisure symétrique telle que celle obtenue dans nos expériences (voir figure C.1a).



(a)



(b)

FIGURE C.2 – (a) *Brisure asymétrique d'une goutte pendante.* (b) *Évolution du facteur H avec le rapport des viscosités η_2/η_1 .* Issues de [80].

Afin d'estimer le coefficient $H \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right)$ dans notre configuration expérimentale, nous nous appuyons sur les travaux de Stone *et al.* sur la déstabilisation d'une colonne liquide pour laquelle les instabilités capillaires conduisent à une brisure symétrique de celle-ci [185, 186, 187]. En comparant les brisures expérimentales à des simulations numériques, et en supposant que la perturbation initiale sur la colonne liquide est sinusoïdale, Stone *et al.*

ont alors montré que la forme de cette colonne peut être décrite au cours du temps par :

$$\frac{A_{min}(t)}{R_0} = \sum_{n=0}^8 k_n'' \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right) t^n \quad (\text{C.2})$$

où R_0 est le rayon initial de la colonne liquide, $A_{min}(t) = R_0 - R(t)$ est l'amplitude de déformation et $k_n'' \left(\frac{\eta_2}{\eta_1} \right)$ sont des coefficients tabulés dépendant du rapport des viscosités.

À partir des tables pour les coefficients k_n'' présentées dans [187], nous effectuons alors une interpolation afin d'obtenir la courbe théorique $A_{min}/R_0 = f(t)$ pour les rapports de viscosités η_2/η_1 de nos échantillons, comme dans l'exemple présenté sur la figure C.3 pour $\eta_2/\eta_1 = 0.87$ (correspondant à des phases de microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5\text{K}$). Dans leur étude, Stone *et al.* suggèrent de considérer des amplitudes de déformations adimensionnées A_{min}/R_0 comprises entre 0.2 et 0.5 afin de déterminer la tension interfaciale par étude de la brisure. Nous considérons donc dans la dynamique de nos brisures uniquement pour les rayons de cou satisfaisant cette condition.

Dans l'exemple présenté en figure C.1, le rayon initial de la colonne est $R_0 = 3.99\mu\text{m}$ ce qui conduit à $0.31 < A_{min}(t)/R_0 < 0.52$ (comme indiqué par la zone verte sur la figure C.3).

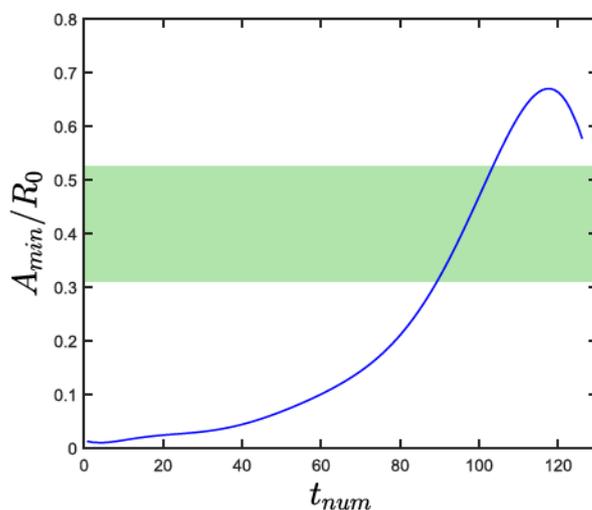


FIGURE C.3 – Évolution de l'amplitude de déformation adimensionnée A_{min}/R_0 en fonction du temps pour un rapport de viscosité $\eta_2/\eta_1 = 0.87$. La zone verte correspond à la gamme $A_{min}(t)/R_0$ explorée dans l'exemple de la figure C.1 pour des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5\text{ K}$.

Le coefficient H intervenant dans l'expression C.1 correspond alors à la pente moyenne de la courbe théorique $A_{min}/R_0 = f(t)$ sur l'intervalle d'amplitude A_{min}/R_0 considéré expérimentalement. Dans notre exemple, nous trouvons alors $H = 0.0153$ avec cette mé-

thode, alors que dans le cas d'une brisure asymétrique nous aurions plutôt $H \simeq 0.035$ (d'après la figure C.2b). Sachant que la viscosité de la phase inférieure dans des microémulsions quasi-critiques à $\Delta T = 5$ K est $\eta_1 = 1.2439$ mPa.s, nous trouvons donc $\gamma = 2.34 \times 10^{-7}$ N/m dans cet exemple.

Pour chacun de nos échantillons, nous répétons cette procédure sur plusieurs brisures de colonne liquide et nous considérons la valeur moyenne de la tension interfaciale.

Annexe D

Description analytique des déformations d'interfaces liquides sous forte excitation laser

La description théorique des déformations d'interfaces liquides obtenues sous forte excitation laser ($P > P_S$) présentée dans cette annexe, et développée par T. Guérin, est la continuité du modèle théorique présenté au chapitre 4. Nous allons tout d'abord rappeler les résultats principaux de ce modèle théorique.

Dans sa forme la plus générale, l'équation de l'interface à l'équilibre est :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{\gamma}{r} \frac{d}{dr}(r \sin \theta_i) - \Delta \rho g h(r) \quad (\text{D.1})$$

où l'angle d'incidence θ_i est tel que $\sin \theta_i = h'(r)/\sqrt{1 + h'^2(r)}$ et la pression de radiation optique en incidence quelconque est définie par :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{2Pn_2\delta}{\pi c\omega_0^2} f(\theta_i, \theta_t) \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (\text{D.2})$$

avec

$$f(\theta_i, \theta_t) = \frac{\cos^2 \theta_i}{\delta} \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan \theta_i}{\tan \theta_t} T(\theta_i, \theta_t) \right] \quad (\text{D.3})$$

où $R(\theta_i, \theta_t)$ et $T(\theta_i, \theta_t)$ sont les coefficients en intensité de réflexion et transmission de Fresnel et $\delta = \Delta n/n_2$.

Dans la limite $\delta \rightarrow 0$, l'expression de la fonction f peut être simplifiée :

$$f(\theta_i, \theta_t) = \begin{cases} \frac{4(\pi/2-\theta_i)^2}{\left((\pi/2-\theta_i)+\sqrt{-2\delta+(\pi/2-\theta_i)^2}\right)^2} & (\theta_i < \theta_{RT} \ll 1) \\ 2\frac{(\pi/2-\theta_i)^2}{\delta} & (\theta_i > \theta_{RT}) \end{cases} \quad (\text{D.4})$$

Profil de déformation dans la région conique

Nous considérons le cas où $P > P_S$. D'après les résultats présentés ci-dessus, cette condition implique qu'au moins une partie du profil de déformation est fortement inclinée, avec des angles d'incidence θ_i proche de $\pi/2$.

Considérons tout d'abord la partie du profil de déformation où $\theta_i > \theta_{RT}$. En négligeant les effets de gravité, nous pouvons alors réécrire l'équation de l'interface D.1, ce qui conduit au premier ordre en $\theta \ll 1$ à :

$$\frac{\gamma}{r} - \gamma\delta \frac{d\theta^2}{dr} = \frac{4Pn_2}{\pi c\omega_0^2} \theta^2 e^{-2r^2/\omega_0^2} \quad (\text{D.5})$$

En supposant que l'angle de déformation locale $\theta(r)$ varie à l'échelle de la taille du faisceau ω_0 tout en restant de l'ordre de $\sqrt{\delta}$, cela suggère que nous pouvons négliger les termes proportionnels à θ^2 dans la pression de Laplace. L'équation D.5 peut alors être inversée et nous identifions ainsi l'évolution de $\theta(r)$ dans la région où la condition de réflexion totale est satisfaite par :

$$\theta(r) = \sqrt{\frac{\pi c\omega_0^2 \gamma}{4Pn_2}} \frac{e^{r^2/\omega_0^2}}{\sqrt{r}} \quad (\text{D.6})$$

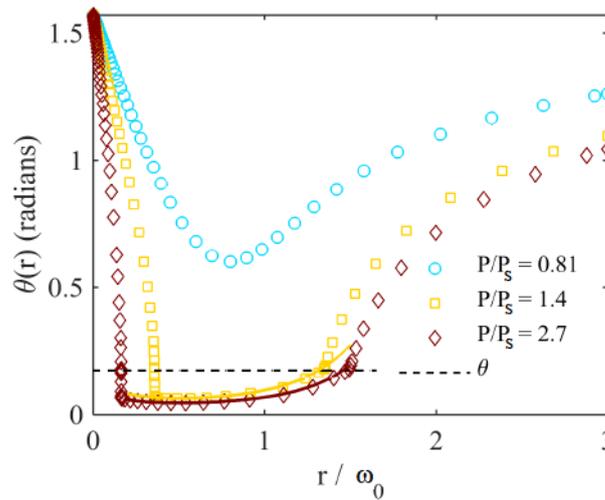


FIGURE D.1 – Profil radial de l'angle de déformation locale obtenu par intégration numérique de l'équation D.1 sans gravité et $\delta = 0.015$. Chaque courbe correspond à une valeur différente de P/P_S . Les lignes en traits pleins correspondent aux prédictions de l'équation D.6. La ligne pointillée correspond à l'angle limite $\pi/2 - \theta_{RT}$.

Cette expression est bien évidemment valide uniquement lorsque $\theta_i > \theta_{RT}$, ce que

ANNEXE D. DESCRIPTION ANALYTIQUE DES DÉFORMATIONS
D'INTERFACES LIQUIDES SOUS FORTE EXCITATION LASER

nous vérifions sur la figure D.1. Notons que l'angle local de déformation $\theta(r)$ décrit par l'équation D.6 admet un minimum pour $r/\omega_0 = 1/2$. Nous pouvons décrire le demi-angle du cône optique par un demi-angle θ_c pris à cette valeur minimale, de sorte que :

$$\theta_c = \sqrt{\frac{\pi c \omega_0 \gamma}{2 P n_2}} e^{1/4} \quad (\text{D.7})$$

Notons qu'il peut être surprenant que le demi-angle du cône ne dépende pas de la différence relative des indices optiques $\delta = \Delta n/n_2$ entre les deux phases. Cependant, δ reste un paramètre important du problème, car il détermine la valeur de la puissance laser au seuil de déstabilisation.

Raccordement de la solution conique avec le reste du profil de déformation

Sur la figure D.1, nous pouvons voir que les solutions numériques semblent afficher un point avec une pente discontinue. Nous précisons ici que cette région peut être comprise en termes d'expansions asymptotiques reliant une région interne (où l'angle local de déformation $\theta(r)$ est faible et donc $\theta_i > \theta_{RT}$) et une région externe (où l'angle local de déformation $\theta(r)$ est grand et donc la condition de réflexion totale n'est plus vérifiée). Puisque l'angle θ augmente exponentiellement avec r (voir équation D.6), il existe donc une valeur de r , que nous notons r_c , pour laquelle $\theta(r_c) = (2\delta)^{1/2}$, i.e :

$$\frac{\gamma}{r_c} = \frac{8 P n_2 \delta}{\pi c \omega_0^2} e^{-2r_c^2/\omega_0^2} \quad (\text{D.8})$$

Au voisinage de r_c , nous devons conserver la variation complète de la fonction f avec θ , l'équation (D.5) est alors remplacée par :

$$\frac{\gamma}{r} - \gamma \delta \frac{d}{dr} \frac{\theta^2}{2\delta} = \frac{2 P n_2}{\pi c \omega_0^2} f\left(\frac{\theta}{\sqrt{\delta}}\right) e^{-2r^2/\omega_0^2} \quad (\text{D.9})$$

L'équation ci-dessus suggère donc que $\theta/\sqrt{\delta}$ varie rapidement à l'échelle de δ . En effet, en posant $\tilde{\theta} = \theta/\sqrt{\delta}$ et $r = r_c + \delta u$, nous obtenons au premier ordre en δ :

$$\gamma \tilde{\theta} \frac{d\tilde{\theta}}{du} = \frac{2 P n_2}{\pi c \omega_0^2} [4 - f(\tilde{\theta})] e^{-2r_c^2/\omega_0^2} \quad (\text{D.10})$$

où nous avons utilisé l'expression D.8 pour r_c .

Cette expression correspond alors à l'équation d'une particule (fictive) sur-amortie, de position $\tilde{\theta}$, évoluant au cours du "temps" u dans un potentiel $V(\tilde{\theta})$ tel que $V'(\tilde{\theta}) \propto [4 - A(\tilde{\theta})]/\tilde{\theta}$. Dans la mesure où $f < 4$ ce potentiel ne possède pas de minimum, ce qui

correspond à des solutions qui divergent lorsque $u \rightarrow \infty$ comme :

$$\tilde{\theta}^2(u \rightarrow \infty) = 12u \frac{Pn_2}{\pi c \omega_0^2} e^{-2r_c^2/\omega_0^2} \quad (\text{D.11})$$

Concernant nos variables originales, cette expression signifie que :

$$\theta^2(r_c + \Delta r) \simeq 12\Delta r \frac{Pn_2}{\pi c \omega_0^2} e^{-2r_c^2/\omega_0^2} \quad (\omega_0 \delta \ll \Delta r \ll \omega_0) \quad (\text{D.12})$$

Nous voyons donc que θ devient plus grand que $\pi/2 - \theta_{RT}$ pour $r > r_c$. Dans ces conditions, le profil $\theta_i(r)$ est encore une solution de l'équation D.1 dans laquelle nous avons pris $f = 1$, avec θ_i non nécessairement proche de $\pi/2$. La solution avec $\sin \theta_i = 1$ pour $r = r_c$ conduit à :

$$\pi/2 - \theta(r) = \arcsin \left[\frac{r_c}{r} + \frac{\pi_0 \omega_0}{4\gamma} \left(\frac{e^{-2r_c^2/\omega_0^2} - e^{-2r^2/\omega_0^2}}{r/\omega_0} \right) \right]. \quad (\text{D.13})$$

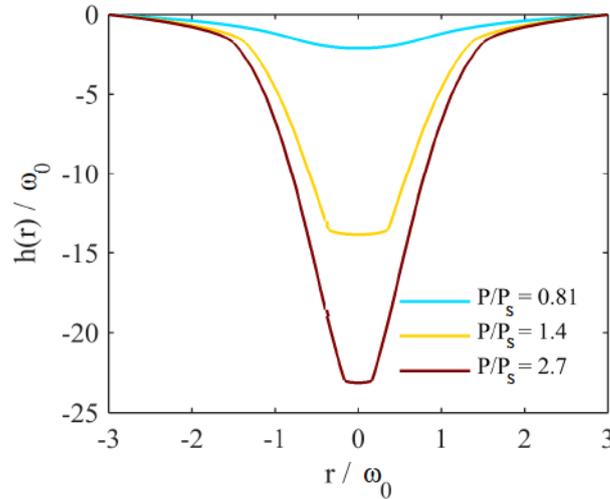


FIGURE D.2 – Profils de déformations théoriques correspondant à la figure D.1.

En conclusion, le profil est décrit en termes d'extensions asymptotiques dans différentes régions : pour $r < r_c$, la réflexion du faisceau incident dans la déformation est totale alors que le facteur géométrique f vaut 1 pour $r > r_c$. Ces régions sont raccordées par une couche limite mince. Si nous imposons un profil de déformation fermé à son extrémité avec $\theta(0) = 0$, nous pouvons montrer que la solution présente une région "externe" supplémentaire pour de petits r (où $f = 1$), qui est reliée à la solution D.6 en réflexion totale par une solution variant à l'échelle de ω_0 .

Annexe E

Micro-fabrication par photolithographie souple

La technique de micro-fabrication par photolithographie souple, inspirée de la micro-électronique, est l'une des plus utilisées dans le domaine de la microfluidique et a été développée par l'équipe de Whitesides à Harvard [188]. La fabrication de puce microfluidique comporte deux grandes étapes qui consistent tout d'abord à réaliser une structure de résine par photolithographie, puis à imprimer ce motif dans une matrice élastomère de PDMS (pour PolyDiMethylSiloxane) comme nous le résumons sur la figure E.1. Afin de réaliser notre motif en relief, nous utilisons une résine négative contenant un époxy (le SU8) et un agent photoactif qui réticule sous irradiation UV.

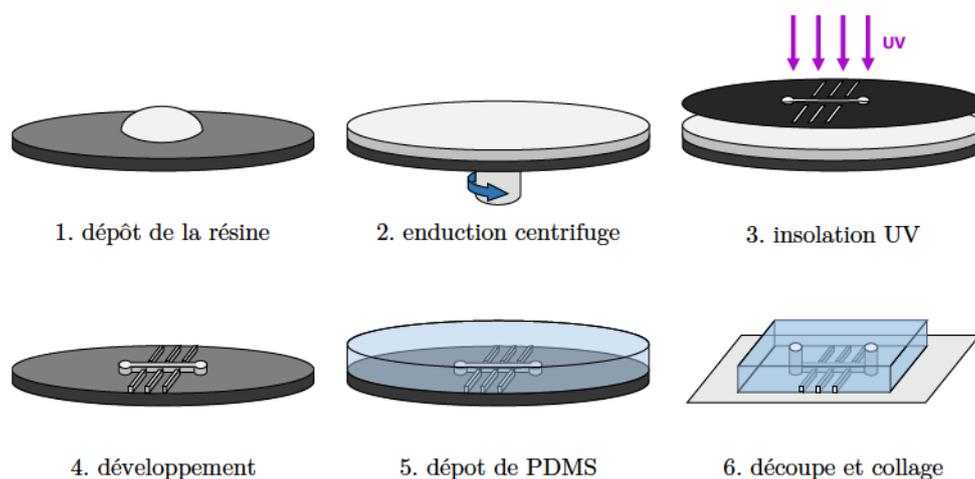


FIGURE E.1 – Principales étapes du procédé de microfabrication

Dans un premier temps, il faut concevoir le motif de la puce microfluidique à réaliser, ce qui est fait à l'aide d'un logiciel spécialisé (Clewin) qui permet une conception extrêmement précise. Ce motif est ensuite imprimé avec une très grande résolution (20000 dpi) sur un masque qui consiste en une feuille plastique noire sur laquelle le motif est transparent.

Nous allons présenter ici les différentes étapes du procédé de photolithographie.

- Nous préparons tout d’abord le substrat, ici une fine plaque circulaire de silicium (ou *wafers*), sur lequel nous allons déposer la résine. Afin d’améliorer le mouillage de la résine sur le *wafers*, nous procédons à une déshydratation thermique (chauffage à 95°C pendant quelques minutes).
- Nous déposons ensuite une goutte de résine photosensible au centre du *wafers*, placé au préalable sur un plateau tournant qui permet de réaliser un étalage homogène de la résine sur le substrat par enduction centrifuge (étape de *spin coating*). La vitesse de rotation est ajustable afin d’obtenir l’épaisseur souhaitée de la couche de résine (et donc du motif).
- Le *wafers* est ensuite placé sur une plaque chauffante (à 65 puis 95°C pendant un temps donné), afin d’évaporer le solvant contenu dans la résine ce qui conduit à son durcissement (étape de *soft bake*).
- Nous passons ensuite à l’étape de l’impression du motif sur la résine, ce qui se fait par insolation sélective de cette dernière dans le proche UV ($\lambda_0 = 365\text{nm}$), à travers le masque précédemment réalisé.
- Nous déposons une seconde fois le *wafers* sur une plaque chauffante afin de réticuler les zones irradiées par la lumière UV. Nous pouvons alors déjà observer à la lumière les contours du motif.
- Le motif est finalement développé par dissolution de la résine non réticulée à l’aide d’un solvant adapté appelé PGMEA (pour Propylène Glycol Monométhyle Éther Acétate). Un rinçage à l’isopropanol et un séchage à l’azote conduisent finalement aux motifs en relief au niveau des zones transparentes du masque.

À la fin du processus de photolithographie, nous obtenons donc un motif de résine SU8 en relief qui nous sert de négatif pour réaliser notre puce microfluidique. Nous allons maintenant décrire les étapes d’impression dans une matrice élastomère.

- Nous préparons tout d’abord cette matrice élastomère qui est un mélange de PDMS et d’un agent réticulant en proportions massiques 10 :1, ce qui permet d’obtenir au final une certaine souplesse de la puce microfluidique.
- Ce mélange est ensuite mis à dégazer dans une cloche à vide, jusqu’à retirer toutes bulles d’air dans celui-ci.
- Nous recouvrons ensuite le *wafers*, placé dans une boîte de Pétri et sur lequel est imprimé le motif de SU8, avec notre mélange.
- Le *wafers* est ensuite placé dans une étuve à 65°C pendant une nuit, ce qui conduit à la réticulation et donc au durcissement du PDMS.
- L’élastomère réticulé est finalement découpé avec un scalpel et les trous d’entrée et de sortie du canal sont percés à l’emporte-pièce. Ces deux opérations se déroulent sous une hotte à flux laminaire afin d’éviter toutes pollutions.

- Le PDMS ainsi découpé et la lame de microscope destinée à servir de support du futur microcanal sont ensuite oxydés sous plasma d'ozone, générant des radicaux très réactifs sur les deux surfaces.
- Ces radicaux permettent alors d'assurer un collage irréversible des deux surfaces lorsqu'elles sont mises en contact. Les canaux ainsi formés présentent donc trois parois de PDMS et une de verre.



Bibliographie

- [1] A. Ashkin. Acceleration and trapping of particles by radiation pressure. *Physical review letters*, 24(4) :156, 1970.
- [2] A. Ashkin and J.M. Dziedzic. Optical levitation by radiation pressure. *Applied Physics Letters*, 19(8) :283–285, 1971.
- [3] A. Ashkin and J.M. Dziedzic. Observation of resonances in the radiation pressure on dielectric spheres. *Physical Review Letters*, 38(23) :1351, 1977.
- [4] A. Ashkin. Trapping of atoms by resonance radiation pressure. *Physical Review Letters*, 40(12) :729, 1978.
- [5] A. Ashkin, J.M. Dziedzic, J.E. Bjorkholm, and S. Chu. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles. *Optics letters*, 11(5) :288–290, 1986.
- [6] A. Ashkin and J.M. Dziedzic. Internal cell manipulation using infrared laser traps. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 86(20) :7914–7918, 1989.
- [7] B. Pouligny, G. Martinot-Lagarde, G. Gréhan, G. Gouesbet, and M.I. Angelova. Stressing phospholipid membranes using mechanical effects of light. In *Trends in Colloid and Interface Science VIII*, pages 293–297. Springer, 1994.
- [8] G. Martinot-Lagarde. Effets mécaniques de la lumière sur des sphères de polystyrène dans l'eau : mesure et applications physico-chimiques. 1995.
- [9] S. Henon, G. Lenormand, A. Richert, and F. Gallet. A new determination of the shear modulus of the human erythrocyte membrane using optical tweezers. *Biophysical journal*, 76(2) :1145–1151, 1999.
- [10] S.G. Shreim, E. Steward, and E. Botvinick. Extending vaterite microviscometry to ex vivo blood vessels by serial calibration. *Biomedical optics express*, 3(1) :37–47, 2012.
- [11] N. Wang, J. Butler, and D.E. Ingber. Mechanotransduction across the cell surface and through the cytoskeleton. *Science*, 260(5111) :1124–1127, 1993.
- [12] J-F. Berret. Local viscoelasticity of living cells measured by rotational magnetic spectroscopy. *Nature communications*, 7 :10134, 2016.
- [13] A. Darwiche, F. Ingremeau, Y. Amarouchene, A. Maali, I. Dufour, and Kellay. Rheology of polymer solutions using colloidal-probe atomic force microscopy. *Physical Review E*, 87(6) :062601, 2013.

- [14] L. Ghislain and W. Webb. Scanning-force microscope based on an optical trap. *Optics Letters*, 18(19) :1678–1680, 1993.
- [15] O. Thoumine and A. Ott. Time scale dependent viscoelastic and contractile regimes in fibroblasts probed by microplate manipulation. *Journal of cell science*, 110(17) :2109–2116, 1997.
- [16] O. Thoumine, A. Ott, O. Cardoso, and J-J. Meister. Microplates : a new tool for manipulation and mechanical perturbation of individual cells. *Journal of biochemical and biophysical methods*, 39(1-2) :47–62, 1999.
- [17] E. Evans and D. Needham. Physical properties of surfactant bilayer membranes : thermal transitions, elasticity, rigidity, cohesion and colloidal interactions. *Journal of Physical Chemistry*, 91(16) :4219–4228, 1987.
- [18] E. Evans and W. Rawicz. Entropy-driven tension and bending elasticity in condensed-fluid membranes. *Physical Review Letters*, 64(17) :2094, 1990.
- [19] S. Lee, D. H Kim, and D. Needham. Equilibrium and dynamic interfacial tension measurements at microscopic interfaces using a micropipet technique. 2. dynamics of phospholipid monolayer formation and equilibrium tensions at the water- air interface. *Langmuir*, 17(18) :5544–5550, 2001.
- [20] K. Moran, A. Yeung, and J. Masliyah. Measuring interfacial tensions of micrometer-sized droplets : a novel micromechanical technique. *Langmuir*, 15(24) :8497–8504, 1999.
- [21] W. Gilbert. De magnete, 1600 (traduit par P.F. Mottelay en 1893).
- [22] J-A. Nollet. *Recherches sur les causes particulieres des phénomènes électriques et sur les effets nuibles ou avantageux qu'on peut en attendre.* chez les freres Guerin, 1749.
- [23] J. Zeleny. The electrical discharge from liquid points, and a hydrostatic method of measuring the electric intensity at their surfaces. *Physical Review*, 3(2) :69, 1914.
- [24] J. Zeleny. Instability of Electrified Liquid Surfaces. page 8, 1917.
- [25] J. Zeleny. On the condition of instability of electrified drops, with applications to electrical discharge from liquid points. In *Proc. Camb. Phil. Soc.*, volume 18, pages 71–83, 1915.
- [26] J. Zeleny. Electrical discharges from pointed conductors. *Physical Review*, 16(2) :102, 1920.
- [27] G. Taylor. Disintegration of Water Drops in an Electric Field. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 280(1382) :383–397, July 1964.
- [28] G. Taylor and A.D. McEwan. The stability of a horizontal fluid interface in a vertical electric field. *Journal of Fluid Mechanics*, 22(01) :1, May 1965.
- [29] G. Taylor. Conical free surfaces and fluid interfaces. In *Applied Mechanics*, pages 790–796. Springer, Berlin, Heidelberg, 1966.

- [30] G. Taylor. Studies in electrohydrodynamics. I. The circulation produced in a drop by an electric field. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 291(1425) :159–166, April 1966.
- [31] G. Taylor. Electrically Driven Jets. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 313(1515) :453–475, December 1969.
- [32] S. Torza, R.G. Cox, and S.G. Mason. Electrohydrodynamic deformation and bursts of liquid drops. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 269(1198) :295–319, February 1971.
- [33] D. Langevin et al. *Light scattering by liquid surfaces and complementary techniques*. M. Dekker, 1992.
- [34] K. Sakai and Y. Yamamoto. Electric field tweezers for characterization of liquid surface. *Applied physics letters*, 89(21) :211911, 2006.
- [35] R.T. Collins, J.J. Jones, M.T. Harris, and O.A. Basaran. Electrohydrodynamic tip streaming and emission of charged drops from liquid cones. *Nature Physics*, 4(2) :149–154, February 2008.
- [36] C. Pantano, A.M. Ganan-Calvo, and A. Barrero. Zeroth-order, electrohydrostatic solution for electrospraying in cone-jet mode. *Journal of aerosol science*, 25(6) :1065–1077, 1994.
- [37] Lord Rayleigh. Xxxiv. on the pressure of vibrations. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 3(15) :338–346, 1902.
- [38] Lord Rayleigh. Xlii. on the momentum and pressure of gaseous vibrations, and on the connexion with the virial theorem. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 10(57) :364–374, 1905.
- [39] G. Hertz and H. Mende. Der schallstrahlungsdruck in flüssigkeiten. *Zeitschrift für Physik*, 114(5-6) :354–367, 1939.
- [40] B. Issenmann, A. Nicolas, R. Wunenburger, S. Manneville, and J-P. Delville. Deformation of acoustically transparent fluid interfaces by the acoustic radiation pressure. *EPL (Europhysics Letters)*, 83(3) :34002, 2008.
- [41] C. Cinbis and B.T. Khuri-Yakub. A noncontacting technique for measuring surface tension of liquids. *Review of scientific instruments*, 63(3) :2048–2050, 1992.
- [42] C. Cinbis, N.N. Mansour, and B.T. Khuri-Yakub. Effect of surface tension on the acoustic radiation pressure-induced motion of the water–air interface. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 94(4) :2365–2372, 1993.
- [43] Y. Tian, Glynn H., and Robert E. Apfel. Investigation of liquid surface rheology of surfactant solutions by droplet shape oscillations : Experiments. *Journal of colloid and interface science*, 187(1) :1–10, 1997.
- [44] A. Ashkin and J.M. Dziedzic. Radiation pressure on a free liquid surface. *Physical Review Letters*, 30(4) :139, 1973.
- [45] A.V. Kats and V.M. Kontorovich. Bending of surface and self-focusing of a laser beam in a linear medium. *ZhETF Pisma Redaktsiiu*, 9 :192, 1969.

- [46] K. Sakai, D. Mizuno, and K. Takagi. Measurement of liquid surface properties by laser-induced surface deformation spectroscopy. *Physical Review E*, 63(4), March 2001.
- [47] Y. Yoshitake, S. Mitani, K. Sakai, and K. Takagi. Measurement of high viscosity with laser induced surface deformation technique. *Journal of applied physics*, 97(2) :024901, 2005.
- [48] Y. Yoshitake, S. Mitani, K. Sakai, and K. Takagi. Surface tension and elasticity of gel studied with laser-induced surface-deformation spectroscopy. *Physical Review E*, 78(4) :041405, 2008.
- [49] S. Mitani and K. Sakai. Measurement of ultralow interfacial tension with a laser interface manipulation technique. *Physical Review E*, 66(3), September 2002.
- [50] R. Wunenburger, A. Casner, and J-P. Delville. Light-induced deformation and instability of a liquid interface. I. Statics. *Physical Review E*, 73(3), March 2006.
- [51] A. Constable, J. Kim, J. Mervis, F. Zarinetchi, and M. Prentiss. Demonstration of a fiber-optical light-force trap. *Optics Letters*, 18(21) :1867, November 1993.
- [52] J. Guck, R. Ananthakrishnan, H. Mahmood, T.J. Moon, C.C. Cunningham, and J. Käs. The optical stretcher : a novel laser tool to micromanipulate cells. *Biophysical journal*, 81(2) :767–784, 2001.
- [53] J. Guck, S. Schinkinger, B. Lincoln, F. Wottawah, S. Ebert, M. Romeyke, D. Lenz, H.M. Erickson, R. Ananthakrishnan, D. Mitchell, et al. Optical deformability as an inherent cell marker for testing malignant transformation and metastatic competence. *Biophysical journal*, 88(5) :3689–3698, 2005.
- [54] A.E. Ekpenyong, C.L. Posey, J.L. Chaput, A. Burkart, M. Marquardt, T.J. Smith, and M.G. Nichols. Determination of cell elasticity through hybrid ray optics and continuum mechanics modeling of cell deformation in the optical stretcher. *Applied optics*, 48(32) :6344–6354, 2009.
- [55] F. Lautenschläger, S. Paschke, S. Schinkinger, A. Bruel, M. Beil, and J. Guck. The regulatory role of cell mechanics for migration of differentiating myeloid cells. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, pages pnas-0811261106, 2009.
- [56] J. Kepler. *De cometis libelli tres ... De cometis libelli tres*. Typis Andreae Apergeri, sumptibus Sebastiani Mylii bibliopolæ Augustani, 1619.
- [57] W. Crookes et al. Xiii. on repulsion resulting from radiation.—parts iii. & iv. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 166 :325–376, 1876.
- [58] P.N. Lebedev. Investigations on the pressure forces of light. *Ann. Phys*, 6 :433–458, 1901.
- [59] E.F. Nichols and G.F. Hull. About radiation pressure. *Ann. Phys*, 12 :225–263, 1903.
- [60] R.V. Jones and J.C.S. Richards. The pressure of radiation in a refracting medium. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 221(1147) :480–498, 1954.

- [61] S.M. Block. Optical tweezers : a new tool for biophysics. *Noninvasive techniques in cell biology*, 1990.
- [62] K. Svoboda and S. Block. Biological applications of optical forces. *Annual review of biophysics and biomolecular structure*, 23(1) :247–285, 1994.
- [63] C. Cohen-Tannoudji. Nobel lecture : Manipulating atoms with photons. *Reviews of Modern Physics*, 70(3) :707, 1998.
- [64] W.D. Phillips. Nobel lecture : Laser cooling and trapping of neutral atoms. *Reviews of Modern Physics*, 70(3) :721, 1998.
- [65] S. Chu. Nobel lecture : The manipulation of neutral particles. *Reviews of Modern Physics*, 70(3) :685, 1998.
- [66] A. Casner, J-P. Delville, and I. Brevik. Asymmetric optical radiation pressure effects on liquid interfaces under intense illumination. *JOSA B*, 20(11) :2355–2362, 2003.
- [67] H. Minkowski. H. minkowski, math. ann. 68, 472 (1910). *Math. Ann.*, 68 :472, 1910.
- [68] M. Abraham. M. abraham, rend. circ. mat. palermo 28, 1 (1909). *Rend. Circ. Mat. Palermo*, 28 :1, 1909.
- [69] M. Abraham. On minkowski’s electrodynamics. *Rend. Circ. Mat. Palermo*, 30 :33–46, 1910.
- [70] J. Petit. Déformations et instabilités d’interfaces liquides pilotées par la diffusion d’une onde laser en milieux turbides. December 2011.
- [71] L.D. Landau and E.M. Lifshitz. *Electrodynamique des milieux continus*. Number 8 in Physique théorique. MIR, Moscow, 1969.
- [72] J. Petit, D. Riviere, H. Kellay, and J.-P. Delville. Break-up dynamics of fluctuating liquid threads. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 109(45) :18327–18331, November 2012.
- [73] E. Freysz. *Etude des non-linéarités optiques dans les mélanges liquides binaires critiques*. Bordeaux 1, January 1990.
- [74] R. Wunenburger, B. Issenmann, E. Brasselet, C. Loussert, V. Hourtane, and J-P. Delville. Fluid flows driven by light scattering. *Journal of Fluid Mechanics*, 666 :273–307, January 2011.
- [75] T. Mainzer and D. Woermann. Temperature dependence of liquid-liquid interfacial tension and universal critical amplitude ratio : an experimental study. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 225(3) :312–322, April 1996.
- [76] T. Sottmann and R. Strey. Ultralow interfacial tensions in water–n-alkane–surfactant systems. *The Journal of Chemical Physics*, 106(20) :8606–8615, May 1997.
- [77] M.R. Moldover. Interfacial tension of fluids near critical points and two-scale-factor universality. *Physical Review A*, 31(2) :1022–1033, February 1985.

- [78] H. Chaar, M.R. Moldover, and J.W. Schmidt. Universal amplitude ratios and the interfacial tension near consolute points of binary liquid mixtures. *The Journal of Chemical Physics*, 85(1) :418–427, July 1986.
- [79] K.K. Mon. New Monte Carlo Estimates of critical interfacial amplitudes and the universality of amplitude ratios. *Physical Review Letters*, 60(26) :2749–2752, June 1988.
- [80] I. Cohen and S.R. Nagel. Testing for scaling behavior dependence on geometrical and fluid parameters in the two fluid drop snap-off problem. *Physics of Fluids*, 13(12) :3533–3541, December 2001.
- [81] A. Casner. Déformations, manipulations et instabilités d’interfaces liquides induites par la pression de radiation d’une onde laser. June 2002.
- [82] P.A. Winsor. Hydrotropy, solubilisation and related emulsification processes. *Trans. Faraday Soc.*, 44(0) :376–398, January 1948.
- [83] O. Ghosh and C.A. Miller. Liquid-crystalline and microemulsion phase behavior in alcohol-free aerosol-ot/oil/brine systems. *Journal of physical chemistry*, 91(17) :4528–4535, 1987.
- [84] R. Aveyard, B.P. Binks, S. Clark, and J. Mead. Interfacial tension minima in oil–water–surfactant systems. Behaviour of alkane–aqueous NaCl systems containing aerosol OT. *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 1*, 82(1) :125–142, January 1986.
- [85] R. Aveyard and T. Lawless. Interfacial tension minima in oil–water–surfactant systems. Systems containing pure non-ionic surfactants, alkanes and inorganic salts. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 1 : Physical Chemistry in Condensed Phases*, 82(9) :2951–2963, 1986.
- [86] B.P. Binks, J. Meunier, O. Abillon, and D. Langevin. Measurement of film rigidity and interfacial tensions in several ionic surfactant-oil-water microemulsion systems. *Langmuir*, 5(2) :415–421, March 1989.
- [87] B.P. Binks, W-G. Cho, P.D.I. Fletcher, and D.N. Petsev. Stability of Oil-in-Water Emulsions in a Low Interfacial Tension System. *Langmuir*, 16(3) :1025–1034, February 2000.
- [88] A. Pouchelon, J. Meunier, D. Langevin, D. Chatenay, and A.M. Cazabat. Low interfacial tensions in three-phase systems obtained with oil-water surfactant mixtures. *Chemical Physics Letters*, 76(2) :277–281, December 1980.
- [89] A. Pouchelon, J. Meunier, D. Langevin, and A.M. Cazabat. Light scattering from oil-water interfaces : measurements of low interfacial tensions. *Journal de Physique Lettres*, 41(10) :239–242, 1980.
- [90] A.M. Cazabat, D. Chatenay, D. Langevin, and A. Pouchelon. Light Scattering Study of Water in Oil Microemulsions. In *Scattering Techniques Applied to Supramolecular and Nonequilibrium Systems*, NATO Advanced Study Institutes Series, pages 787–794. Springer, Boston, MA, 1981.

-
- [91] A. Pouchelon. Etude par diffusion de la lumière d'un système polyphasique modèle pour la récupération assistée du pétrole : Origine des basses tensions interfaciales. 1982.
- [92] A. Casner and J-P. Delville. Giant Deformations of a Liquid-Liquid Interface Induced by the Optical Radiation Pressure. *Physical Review Letters*, 87(5), July 2001.
- [93] A. Casner and J-P. Delville. Laser-Induced Hydrodynamic Instability of Fluid Interfaces. *Physical Review Letters*, 90(14), April 2003.
- [94] H. Chraïbi, D. Lasseux, E. Arquis, R. Wunenburger, and J-P. Delville. Simulation of an optically induced asymmetric deformation of a liquid-liquid interface. *European Journal of Mechanics - B/Fluids*, 27(4) :419–432, July 2008. arXiv : 0903.1241.
- [95] L. Oddershede and S.R. Nagel. Singularity during the onset of an electrohydrodynamic spout. *Physical review letters*, 85(6) :1234, 2000.
- [96] I. Marginean, L. Parvin, L. Heffernan, and A. Vertes. Flexing the Electrified Meniscus : The Birth of a Jet in Electrosprays. *Analytical Chemistry*, 76(14) :4202–4207, July 2004.
- [97] E.O. Elele, Y. Shen, D.R. Pettit, and B. Khusid. Detection of a Dynamic Cone-Shaped Meniscus on the Surface of Fluids in Electric Fields. *Physical Review Letters*, 114(5), February 2015.
- [98] F.K. Wohlhuter and O.A. Basaran. Shapes and stability of pendant and sessile dielectric drops in an electric field. *Journal of Fluid Mechanics*, 235(-1) :481, February 1992.
- [99] A.M. Gañán-Calvo. Cone-Jet Analytical Extension of Taylor's Electrostatic Solution and the Asymptotic Universal Scaling Laws in Electrospraying. *Physical Review Letters*, 79(2) :217–220, July 1997.
- [100] D.A. Saville. Electrohydrodynamics : The Taylor-Melcher Leaky Dielectric Model. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 29(1) :27–64, 1997.
- [101] H.A. Stone, J.R. Lister, and M.P. Brenner. Drops with conical ends in electric and magnetic fields. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 455(1981) :329–347, January 1999.
- [102] J.F. De La Mora. The effect of charge emission from electrified liquid cones. *Journal of Fluid Mechanics*, 243 :561–574, 1992.
- [103] A. Ramos and A. Castellanos. Conical points in liquid-liquid interfaces subjected to electric fields. *Physics Letters A*, 184(3) :268–272, January 1994.
- [104] G. Chen and A. Gomez. Counterflow diffusion flames of quasi-monodisperse electrostatic sprays. In *Symposium (international) on combustion*, volume 24, pages 1531–1539. Elsevier, 1992.
- [105] J.B. Fenn, M. Mann, C.K. Meng, S.F. Wong, and C.M. Whitehouse. Electrospray ionization for mass spectrometry of large biomolecules. *Science*, 246(4926) :64–71, 1989.

- [106] M. Yu, K. Hyun Ahn, and S.J. Lee. Design optimization of ink in electrohydrodynamic jet printing : Effect of viscoelasticity on the formation of Taylor cone jet. *Materials & Design*, 89 :109–115, 2016.
- [107] J. Zeng and T. Korsmeyer. Principles of droplet electrohydrodynamics for lab-on-a-chip. *Lab on a Chip*, 4(4) :265–277, 2004.
- [108] T. Achtzehn, R. Müller, D. Duft, and T. Leisner. The Coulomb instability of charged microdroplets : dynamics and scaling. *The European Physical Journal D*, 34(1-3) :311–313, July 2005.
- [109] M.C. Gray. Legendre functions of fractional order. *Quarterly of Applied Mathematics*, 11(3) :311–318, 1953.
- [110] H. Li, T.C. Halsey, and A. Lobkovsky. Singular Shape of a Fluid Drop in an Electric or Magnetic Field. *Europhysics Letters (EPL)*, 27(8) :575–580, September 1994.
- [111] H. Park, K. Kim, and S. Kim. Effects of a guard plate on the characteristics of an electrospray in the cone-jet mode. *Journal of aerosol science*, 35(11) :1295–1312, 2004.
- [112] E. Brasselet and J-P. Delville. Liquid-core liquid-cladding optical fibers sustained by light radiation pressure : Electromagnetic model and geometrical analog. *Physical Review A*, 78(1), July 2008.
- [113] R.D. Schroll, R. Wunenburger, A. Casner, W.W. Zhang, and J-P. Delville. Liquid Transport due to Light Scattering. *Physical Review Letters*, 98(13), March 2007.
- [114] S. Shoji and S. Kawata. Optically-induced growth of fiber patterns into a photopolymerizable resin. *Applied physics letters*, 75(5) :737–739, 1999.
- [115] A.S. Kewitsch and A. Yariv. Self-focusing and self-trapping of optical beams upon photopolymerization. *Optics Letters*, 21(1) :24–26, 1996.
- [116] M. Kagami, T. Yamashita, and H. Ito. Light-induced self-written three-dimensional optical waveguide. *Applied Physics Letters*, 79(8) :1079–1081, 2001.
- [117] S. Shoji, S. Kawata, A.A. Sukhorukov, and Y.S. Kivshar. Self-written waveguides in photopolymerizable resins. *Optics letters*, 27(3) :185–187, 2002.
- [118] K. Dorkenoo, O. Crégut, L. Mager, F. Gillot, C. Carre, and A. Fort. Quasi-solitonic behavior of self-written waveguides created by photopolymerization. *Optics letters*, 27(20) :1782–1784, 2002.
- [119] J-C. Bacri and D. Salin. Instability of ferrofluid magnetic drops under magnetic field. *Journal de Physique Lettres*, 43(17) :649–654, 1982.
- [120] J-C. Bacri and D. Salin. Dynamics of the shape transition of a magnetic ferrofluid drop. *Journal de Physique Lettres*, 44(11) :415–420, 1983.
- [121] J.D. Sherwood. Breakup of fluid droplets in electric and magnetic fields. *Journal of Fluid Mechanics*, 188(-1) :133, March 1988.

-
- [122] N. Le Grand, A. Daerr, and L. Limat. Shape and motion of drops sliding down an inclined plane. *Journal of Fluid Mechanics*, 541 :293–315, 2005.
- [123] E. Rio, A. Daerr, B. Andreotti, and L. Limat. Boundary Conditions in the Vicinity of a Dynamic Contact Line : Experimental Investigation of Viscous Drops Sliding Down an Inclined Plane. *Physical Review Letters*, 94(2), January 2005.
- [124] J.H. Snoeijer, N. Le Grand-Piteira, L. Limat, H.A. Stone, and J. Eggers. Cornered drops and rivulets. *Physics of Fluids*, 19(4) :042104, 2007.
- [125] J.H. Snoeijer, G. Delon, M. Fermigier, and B. Andreotti. Avoided Critical Behavior in Dynamically Forced Wetting. *Physical Review Letters*, 96(17), May 2006.
- [126] G. Delon. Nature de la transition de landau-levich. 2007.
- [127] G. Delon, M. Fermigier, J.H. Snoeijer, and B. Andreotti. Relaxation of a dewetting contact line. part 2. experiments. *Journal of Fluid Mechanics*, 604 :55–75, 2008.
- [128] B.W. Zeff, B. Kleber, J. Fineberg, and D.P. Lathrop. Singularity dynamics in curvature collapse and jet eruption on a fluid surface. *Nature*, 403(6768) :401, 2000.
- [129] J.M. Fernandez and G.M. Homsy. Chemical reaction-driven tip-streaming phenomena in a pendant drop. *Physics of Fluids*, 16(7) :2548–2555, July 2004.
- [130] R. Krechetnikov and G.M. Homsy. On physical mechanisms in chemical reaction-driven tip-streaming. *Physics of Fluids*, 16(7) :2556–2566, 2004.
- [131] H.C. Mayer and R. Krechetnikov. The nature of chemical reaction-driven tip-streaming. *Journal of Applied Physics*, 113(17) :174907, 2013.
- [132] J.H. Snoeijer and P. Brunet. Pointy ice-drops : How water freezes into a singular shape. *American Journal of Physics*, 80(9) :764–771, September 2012.
- [133] A.G. Marin, O.R. Enriquez, P. Brunet, P. Colinet, and J.H. Snoeijer. Universality of tip singularity formation in freezing water drops. *Physical review letters*, 113(5) :054301, 2014.
- [134] D.G. Georgiev, R.J. Baird, I. Avrutsky, and G. Auner, G .and Newaz. Controllable excimer-laser fabrication of conical nano-tips on silicon thin films. *Applied physics letters*, 84(24) :4881–4883, 2004.
- [135] A. Casner and J-P. Delville. Adaptative lensing driven by the radiation pressure of a continuous-wave laser wave upon a near-critical liquid–liquid interface. *Optics letters*, 26(18) :1418–1420, 2001.
- [136] G. Nava, F. Bragheri, T. Yang, P. Minzioni, R. Osellame, I. Cristiani, and K. Berg-Sørensen. All-silica microfluidic optical stretcher with acoustophoretic prefocusing. *Microfluidics and Nanofluidics*, 19(4) :837–844, October 2015.
- [137] G. Xiao, K. Yang, H. Luo, X. Chen, and W. Xiong. Orbital Rotation of Trapped Particle in a Transversely Misaligned Dual-Fiber Optical Trap. *IEEE Photonics Journal*, 8(1) :1–8, February 2016.

- [138] X. Chen, G. Xiao, H. Luo, W. Xiong, and K. Yang. Dynamics analysis of microsphere in a dual-beam fiber-optic trap with transverse offset. *Optics Express*, 24(7) :7575, April 2016.
- [139] C. Meichner, A. E Schedl, C. Neuber, K. Kreger, H-W. Schmidt, and L. Kador. Refractive-index determination of solids from first-and second-order critical diffraction angles of periodic surface patterns. *AIP Advances*, 5(8) :087135, 2015.
- [140] A. Mata, A.J. Fleischman, and S. Roy. Characterization of polydimethylsiloxane (pdms) properties for biomedical micro/nanosystems. *Biomedical microdevices*, 7(4) :281–293, 2005.
- [141] B. Lincoln, S. Schinkinger, K. Travis, F. Wottawah, S. Ebert, F. Sauer, and J. Guck. Reconfigurable microfluidic integration of a dual-beam laser trap with biomedical applications. *Biomedical Microdevices*, 9(5) :703–710, August 2007.
- [142] A. Ashkin. Forces of a single-beam gradient laser trap on a dielectric sphere in the ray optics regime. *Biophysical Journal*, 61(2) :569–582, February 1992.
- [143] P.B. Bareil, Y. Sheng, and A. Chiou. Local stress distribution on the surface of a spherical cell in an optical stretcher. *Optics express*, 14(25) :12503–12509, 2006.
- [144] L. Boyde, A. Ekpenyong, G. Whyte, and J. Guck. Comparison of stresses on homogeneous spheroids in the optical stretcher computed with geometrical optics and generalized Lorenz–Mie theory. *Applied Optics*, 51(33) :7934, November 2012.
- [145] L. Ferrara, E. Baldini, P. Minzioni, F. Bragheri, C. Liberale, E. Di Fabrizio, and I. Cristiani. Experimental study of the optical forces exerted by a Gaussian beam within the Rayleigh range. *Journal of Optics*, 13(7) :075712, July 2011.
- [146] J. Happel and H. Brenner. *Low Reynolds number hydrodynamics : with special applications to particulate media*, volume 1. Springer Science & Business Media, 2012.
- [147] S. Nemoto and H. Togo. Axial force acting on a dielectric sphere in a focused laser beam. *Applied Optics*, 37(27) :6386, September 1998.
- [148] A.S. Utada, A. Fernandez-Nieves, H.A. Stone, and D.A. Weitz. Dripping to jetting transitions in coflowing liquid streams. *Physical review letters*, 99(9) :094502, 2007.
- [149] G. Bolognesi, A. Hargreaves, A.D. Ward, A.K. Kirby, C.D Bain, and O. Ces. Microfluidic generation of monodisperse ultra-low interfacial tension oil droplets in water. *RSC Advances*, 5(11) :8114–8121, 2015.
- [150] H. Engelhardt, H.P. Duwe, and E. Sackmann. Bilayer bending elasticity measured by fourier analysis of thermally excited surface undulations of flaccid vesicles. *Journal de Physique Lettres*, 46(8) :395–400, 1985.
- [151] U. Seifert. Configurations of fluid membranes and vesicles. *Advances in physics*, 46(1) :13–137, 1997.
- [152] M. Angelova and D.S. Dimitrov. A mechanism of liposome electroformation. In *Trends in colloid and interface science II*, pages 59–67. Springer, 1988.

- [153] M. Angelova, S. Soléau, P. Méléard, F. Faucon, and P. Bothorel. Preparation of giant vesicles by external ac electric fields. kinetics and applications. In *Trends in Colloid and Interface Science VI*, pages 127–131. Springer, 1992.
- [154] M.E. Solmaz, S. Sankhagowit, R. Biswas, C.A. Mejia, M.L. Povinelli, and N. Malmstadt. Optical stretching as a tool to investigate the mechanical properties of lipid bilayers. *RSC Advances*, 3(37) :16632, 2013.
- [155] J. Genova, A. Zheliaskova, and M.D. Mitov. The influence of sucrose on the elasticity of soap lipid membrane studied by the analysis of thermally induced shape fluctuations. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 282 :420–422, 2006.
- [156] R. Dimova. Recent developments in the field of bending rigidity measurements on membranes. *Advances in colloid and interface science*, 208 :225–234, 2014.
- [157] U. Delabre, K. Feld, E. Crespo, G. Whyte, C. Sykes, U. Seifert, and J. Guck. Deformation of phospholipid vesicles in an optical stretcher. *Soft Matter*, 11(30) :6075–6088, 2015.
- [158] S. Ebert, K. Travis, B. Lincoln, and J. Guck. Fluorescence ratio thermometry in a microfluidic dual-beam laser trap. *Optics express*, 15(23) :15493–15499, 2007.
- [159] M.E. Solmaz, R. Biswas, S. Sankhagowit, J.R. Thompson, C. Mejia, N. Malmstadt, and M. Povinelli. Optical stretching of giant unilamellar vesicles with an integrated dual-beam optical trap. *Biomedical Optics Express*, 3(10) :2419, October 2012.
- [160] U. Seifert. The concept of effective tension for fluctuating vesicles. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 97(2) :299–309, 1995.
- [161] K.H. De Haas, C. Blom, D. Van den Ende, M. Duits, and J. Mellema. Deformation of giant lipid bilayer vesicles in shear flow. *Physical Review E*, 56(6) :7132, 1997.
- [162] J. Guck, R. Ananthakrishnan, T.J. Moon, C.C. Cunningham, and J. Käs. Optical deformability of soft biological dielectrics. *Physical review letters*, 84(23) :5451, 2000.
- [163] U. Seifert. Fluid membranes in hydrodynamic flow fields : Formalism and an application to fluctuating quasispherical vesicles in shear flow. *The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems*, 8(3) :405–415, 1999.
- [164] M. Kummrow and W. Helfrich. Deformation of giant lipid vesicles by electric fields. *Physical Review A*, 44(12) :8356, 1991.
- [165] V. Vitkova, J. Genova, and I. Bivas. Permeability and the hidden area of lipid bilayers. *European Biophysics Journal*, 33(8) :706–714, 2004.
- [166] J. Henriksen, A.C. Rowat, and J.H. Ipsen. Vesicle fluctuation analysis of the effects of sterols on membrane bending rigidity. *European Biophysics Journal*, 33(8) :732–741, 2004.
- [167] J. Henriksen, A.C. Rowat, E. Brief, Y.W. Hsueh, J.L. Thewalt, M.J. Zuckermann, and J.H. Ipsen. Universal behavior of membranes with sterols. *Biophysical journal*, 90(5) :1639–1649, 2006.

- [168] G. Niggemann, M. Kummrow, and W. Helfrich. The bending rigidity of phosphatidylcholine bilayers : dependences on experimental method, sample cell sealing and temperature. *Journal de Physique II*, 5(3) :413–425, 1995.
- [169] M. Kocun and A. Janshoff. Pulling tethers from pore-spanning bilayers : Towards simultaneous determination of local bending modulus and lateral tension of membranes. *Small*, 8(6) :847–851, 2012.
- [170] C. Rockstuhl and H.P. Herzig. Rigorous diffraction theory applied to the analysis of the optical force on elliptical nano- and micro-cylinders. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics*, 6(10) :921–931, October 2004.
- [171] H. Sosa-Martinez and J.C. Gutiérrez-Vega. Optical forces on a Mie spheroidal particle arbitrarily oriented in a counterpropagating trap. *Journal of the Optical Society of America B*, 26(11) :2109, November 2009.
- [172] P. Brule-Bareil and Y. Sheng. Evaluation of fiber coupling coefficient by a deformed cell in dual-beam optical stretcher. In *Holography and Diffractive Optics III*, volume 6832, page 68320L. International Society for Optics and Photonics, 2008.
- [173] G. Xiao, X. Han, X. Chen, K. Yang, and H. Luo. The integrated lensing effect and its application in single cell refractive index measurement in a dual-fiber optical trap. *Optik*, 161 :129–135, 2018.
- [174] K. Alessandri, B.R. Sarangi, V.V. Gurchenkov, B. Sinha, T.R. Kießling, L. Fetler, F. Rico, S. Scheuring, C. Lamaze, A. Simon, et al. Cellular capsules as a tool for multicellular spheroid production and for investigating the mechanics of tumor progression in vitro. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 110(37) :14843–14848, 2013.
- [175] P.M. Vlahovska, R.S. Gracia, S. Aranda-Espinoza, and R. Dimova. Electrohydrodynamic model of vesicle deformation in alternating electric fields. *Biophysical journal*, 96(12) :4789–4803, 2009.
- [176] V. Heinrich and R.E. Waugh. A piconewton force transducer and its application to measurement of the bending stiffness of phospholipid membranes. *Annals of biomedical engineering*, 24(5) :595–605, 1996.
- [177] D. Cuvelier, I. Derényi, P. Bassereau, and P. Nassoy. Coalescence of membrane tethers : experiments, theory, and applications. *Biophysical journal*, 88(4) :2714–2726, 2005.
- [178] H. Zhou, B. Gabilondo, W. Losert, and W. van de Water. Stretching and relaxation of vesicles. *Physical Review E*, 83(1) :011905, 2011.
- [179] K. Riske and R. Dimova. Electric pulses induce cylindrical deformations on giant vesicles in salt solutions. *Biophysical journal*, 91(5) :1778–1786, 2006.
- [180] S. Aranda, K. A Riske, R. Lipowsky, and R. Dimova. Morphological transitions of vesicles induced by alternating electric fields. *Biophysical journal*, 95(2) :L19–L21, 2008.

-
- [181] C.G. Garton and Z. Krasucki. Bubbles in insulating liquids : stability in an electric field. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 280(1381) :211–226, July 1964.
- [182] O. Vizika and D.A. Saville. The electrohydrodynamic deformation of drops suspended in liquids in steady and oscillatory electric fields. *Journal of Fluid Mechanics*, 239(-1) :1, June 1992.
- [183] W.W. Zhang and J.R. Lister. Similarity solutions for capillary pinch-off in fluids of differing viscosity. *Physical review letters*, 83(6) :1151, 1999.
- [184] I. Cohen, M.P. Brenner, J. Eggers, and S.R. Nagel. Two fluid drop snap-off problem : Experiments and theory. *Physical Review Letters*, 83(6) :1147, 1999.
- [185] H.A. Stone and L.G. Leal. Relaxation and breakup of an initially extended drop in an otherwise quiescent fluid. *Journal of Fluid Mechanics*, 198 :399–427, 1989.
- [186] M. Tjahjadi, H.A. Stone, and J.M. Ottino. Satellite and subsatellite formation in capillary breakup. *Journal of Fluid Mechanics*, 243 :297–317, 1992.
- [187] M. Tjahjadi, J.M. Ottino, and H.A. Stone. Estimating interfacial tension via relaxation of drop shapes and filament breakup. *AIChE journal*, 40(3) :385–394, 1994.
- [188] D.C. Duffy, J.C. McDonald, O. Schueller, and G.M. Whitesides. Rapid prototyping of microfluidic systems in poly (dimethylsiloxane). *Analytical chemistry*, 70(23) :4974–4984, 1998.

MANIPULATION ET DÉFORMATION OPTIQUE D'INTERFACES MOLLES

Résumé : Ce travail de thèse est consacré à la manipulation et la déformation optique d'interfaces liquides molles, cela dans deux géométries fondamentales : plane et sphérique. Nous montrons alors que les déformations induites par pression de radiation optique permettent de déduire les propriétés des interfaces, comme la tension interfaciale par exemple. Dans le cadre de la déformation d'une interface liquide plane par pression de radiation, nous généralisons pour la première fois la manifestation électro-hydrodynamique des cônes de Taylor au régime optique, en montrant que des cônes liquides peuvent émerger sous forte excitation laser. Nous avons alors caractérisé la morphologie de ces « cônes optiques » et nous montrons que l'angle de ces derniers dépend à la fois des paramètres de l'excitation laser mais aussi des caractéristiques des fluides. Une étude analytique ainsi qu'une étude numérique ont alors été menées afin de rendre compte des comportements observés. Afin d'étudier la déformation d'interfaces molles en géométrie sphérique, nous avons développé un double piège optique fibré en dispositif microfluidique dans une configuration inédite en termes de longueur d'onde excitatrice et de puissance laser. Nous avons alors appliqué notre dispositif à la déformation de vésicules en tant qu'objets modèles mous et nous montrons que notre double piège est bien adapté à la caractérisation rhéologique d'objets micrométriques déformables. Grâce à l'utilisation de faisceaux laser de forte puissance, nous mettons ici en évidence expérimentalement l'apparition d'un régime non-linéaire de déformation au sein de notre double piège optique.

Mots clés : Pression de radiation, Déformations, Interfaces liquides, Microfluidique, Piège optique

OPTICAL MANIPULATION AND DEFORMATION OF SOFT INTERFACES

This thesis work is devoted to the optical manipulation and deformation of soft liquid interfaces, in two fundamental geometries : plane and spherical. We then show that the deformations induced by optical radiation pressure allow to deduce the properties of interfaces, such as interfacial tension for example. In the framework of the deformation of a plane liquid interface by optical radiation pressure, we generalize for the first time the electro-hydrodynamic manifestation of Taylor cones to the optical regime, showing that liquid cones can emerge under intense laser excitation. We then characterized the morphology of these "optical cones" and we show that their angle depends both on the parameters of the laser excitation and on the characteristics of the fluids. An analytical study as well as a numerical investigation were then conducted to account for the observed behaviors. In order to study the deformation of soft interfaces in spherical geometry, we have developed a fiber-based dual-beam optical trap in a microfluidic device in a novel configuration in terms of excitation wavelength and laser power. We then applied our device to the deformation of vesicles as soft model objects and we show that our dual-beam trap is well adapted to the rheological characterization of deformable micron-sized objects. Thanks to the use of high laser power beams, we experimentally highlight the appearance of a non-linear deformation regime within our dual-beam optical trap.

Keywords : Radiation pressure, Deformations, Liquid interfaces, Microfluidics, Optical trap
